



TITLE:

液体物質内における高速荷電粒子線のエネルギー損失・散乱過程に関する研究(Dissertation_全文)

AUTHOR(S):

清水, 森人

CITATION:

清水, 森人. 液体物質内における高速荷電粒子線のエネルギー損失・散乱過程に関する研究. 京都大学, 2011, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2011-03-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k16080>

RIGHT:

許諾条件により要旨・本文は2012-04-01に公開

液体物質内における高速荷電粒子線の
エネルギー損失・散乱過程に関する研究

清水森人

目次

目次	i
図目次	v
表目次	ix
第 1 章 序論	1
1.1 研究背景	1
1.2 阻止能測定 of 歴史	2
1.3 本研究の目的と意義	5
1.4 本論文の構成	8
第 2 章 エネルギー損失・散乱理論	9
2.1 二体衝突	9
2.2 弾性衝突と非弾性衝突	13
2.3 核的阻止能	14
2.4 電子的阻止能	16
2.5 Bethe-Bloch の阻止能公式	17
2.5.1 平均励起エネルギー	20
2.5.2 殻補正項	21
2.5.3 Barkas 補正項	23

2.5.4	ブロッホ補正項	24
2.6	Bragg 加法則	26
2.7	弾性散乱断面積	30
2.7.1	遮蔽型ポテンシャル	33
第 3 章	実験	37
3.1	実験装置	37
3.1.1	ビームライン	37
3.1.2	衝突槽	38
3.1.3	検出器	38
3.1.4	HeNe レーザーによる回折パターン測定	43
3.1.5	測定回路	45
3.2	液体分子線	46
3.2.1	液体分子線法の原理	46
3.2.2	液体分子線の温度特性	48
3.2.3	液体分子線の実験環境評価	54
第 4 章	GEANT4 によるモンテカルロシミュレーション	59
4.1	GEANT4	59
4.2	エネルギー損失計算	60
4.2.1	阻止断面積表の計算	61
4.2.2	エネルギー損失計算	63
4.3	散乱計算	67
4.4	計算環境	71
第 5 章	Al ワイヤー標的透過後の 2.5 MeV H^+ の測定	73
5.1	Al ワイヤー標的	73
5.2	標的透過後の H^+ のエネルギー分布	74

5.3	標的透過後の H^+ の散乱角度分布	78
5.4	モンテカルロシミュレーションによる再現計算	79
5.5	再現計算の統計精度評価	82
5.6	原子間ポテンシャルの比較	84
5.7	阻止断面積の決定	86
5.8	まとめ	89
第 6 章	液体水標的透過後の 4.0 MeV He^{2+} の測定	91
6.1	液体水標的	91
6.2	標的透過後の He^{2+} のエネルギー分布	92
6.3	標的透過後の He^{2+} の散乱角度分布	94
6.4	4.0 MeV He^{2+} に対する液体の水の阻止断面積	95
6.5	平均励起エネルギー	101
6.6	まとめ	104
第 7 章	液体水標的透過後の H^+ の測定	107
7.1	液体水標的	107
7.2	実験・計算結果	107
7.3	平均励起エネルギー	112
7.4	まとめ	114
第 8 章	液体アルコール標的の阻止断面積測定	117
8.1	液体アルコール標的	118
8.2	液体エタノール標的透過後の He^{2+} の測定	118
8.3	H^+ に対する各アルコールの阻止断面積	124
8.4	まとめ	131
第 9 章	総括	133
9.1	エネルギー損失, 散乱角度分布測定	133

9.2	液体の水の阻止断面積	134
9.3	平均励起エネルギー	134
9.4	Bragg 加法則	135
9.5	今後の課題と展望	135
参考文献		139
研究業績一覧		143
謝辞		147

図目次

1.1	生体深さとエネルギー付与	3
1.2	陽子線に対する水の阻止断面積	4
2.1	ニュートンダイアグラム	11
2.2	核的阻止能	15
3.1	ビームラインセットアップ概略図	38
3.2	衝突チェンバー実験セットアップ概略図	39
3.3	許容角の見積もり概略図	40
3.4	$x = 0.4$ インチの位置における角度誤差の検出効率	41
3.5	標的の位置決め	42
3.6	干渉縞測定	44
3.7	正常時の干渉縞	44
3.8	異常時の干渉縞	44
3.9	エネルギースペクトル測定セットアップ概略図	46
3.10	^{241}Am からの α 線のエネルギースペクトル	47
3.11	液体分子線	48
3.12	ノズルからの距離 z に対する水の液体分子線の温度変化	52
3.13	ノズルからの距離 z に対する水の液体分子線の密度変化	53

3.14	ノズルからの距離に対する水の液体分子線の半径とノズルの半径の比の 変化	54
3.15	環境評価	55
3.16	蒸気相厚さの計算結果	56
4.1	モンテカルロシミュレーション	60
5.1	2.5 MeV H^+ の Al ワイヤー標的透過後のエネルギー分布	74
5.2	エネルギー損失分布モデル	75
5.3	エネルギー分布の再現	77
5.4	2.5 MeV H^+ の Al ワイヤー標的透過後の散乱角度分布	78
5.5	2.5 MeV H^+ の Al ワイヤー標的透過後のエネルギー分布の再現計算結果	80
5.6	2.5 MeV H^+ の Al ワイヤー標的透過後の散乱角度分布の再現計算結果 .	81
5.7	計算した粒子数によるエネルギー分布の再現計算結果の変化	82
5.8	計算した粒子数による散乱角度分布の再現計算結果の変化	83
5.9	原子間ポテンシャルによる散乱角度分布計算結果の比較	85
5.10	原子間ポテンシャル毎の計算結果のずれ	86
5.11	散乱角度分布の再現計算結果の比較	87
5.12	エネルギー分布の再現計算結果の比較	88
6.1	4.0 MeV He^{2+} の液体水標的透過後のエネルギー分布	92
6.2	4.0 MeV He^{2+} の液体水標的透過後の散乱角度分布	94
6.3	4.0 MeV He^{2+} の液体水標的透過後のエネルギー分布再現計算結果 . . .	96
6.4	4.0 MeV He^{2+} の液体水標的透過後の散乱角度分布再現計算結果	97
6.5	He に対する液体の水の阻止断面積	98
6.6	阻止能の衝突径数依存性	100
6.7	He に対する水の阻止断面積における各補正項の値	101
7.1	934 keV H^+ の液体水標的透過後のエネルギー分布	108

7.2	934 keV H^+ の液体水標的透過後の散乱角度分布	109
7.3	陽子に対する液体の水の阻止断面積	111
7.4	陽子に対する液体の水の阻止断面積における各補正項の値	112
7.5	陽子に対する液体の水の阻止断面積	115
8.1	4.0 MeV He^{2+} の液体エタノール標的透過後のエネルギー分布	119
8.2	4.0 MeV He^{2+} の液体エタノール標的透過後の散乱角度分布	120
8.3	He に対する液体エタノールの阻止断面積	123
8.4	H^+ に対する液体アルコールの阻止断面積	126
8.5	H^+ に対する液体アルコールの阻止断面積の炭素数依存性	127

表目次

2.1	各電子殻の結合エネルギー E_i と遮蔽定数 d_i	22
2.2	Barkas 項計算用の $F(b/x^{1/2})$ の数値表	25
2.3	各物質の原子番号と平均励起エネルギー	30
2.4	各ポテンシャルの遮蔽パラメーター	35
3.1	水の密度計算の係数	51
4.1	陽子に対する阻止断面積計算パラメーター	62
4.2	α 線に対する阻止断面積計算パラメーター	62
4.3	研究室の並列計算環境	72
4.4	大型計算機の並列計算環境	72
6.1	水の構成原子の原子番号と原子量	95
6.2	散乱角度毎の最大エネルギー損失の実験結果のずれ	99
6.3	He の有効電荷計算のパラメーター	102
7.1	阻止断面積の再現計算結果	110
8.1	アルコールの構成原子の原子番号と原子量	122
8.2	H^+ に対する液体アルコールの阻止断面積測定結果	125

8.3	本研究で得られた液体アルコールの阻止断面積の値に対する近似曲線の 各パラメーターの値	125
8.4	各エネルギーの H^+ に対する CH_2 の阻止断面積	128

第 1 章

序論

本研究では主に液体の水などの液体標的内における陽子やヘリウムイオンなどの高速荷電粒子線のエネルギー損失・散乱過程に関して研究を行った。本論文では、本研究の目的のために開発した液体分子線法と高速イオンビーム衝突法を組み合わせた実験方法の詳細と、それらを用いて行った液体標的の阻止断面積測定について説明し、液体標的内におけるエネルギー損失・散乱過程に関する研究成果について説明する。本章ではその研究背景と研究目的を明らかにした後、本論文の構成について説明する。

1.1 研究背景

現在、放射線（X 線， γ 線，電子線，荷電粒子線）は工業，医療など様々な分野で応用されている。例えば，物質によって X 線の透過力が違うことを利用した X 線撮影（本論文を執筆している 2010 年はレントゲンが X 線を発見してちょうど 115 年になる）は放射線利用の代表格といえる。その他にも，X 線 CT (X-ray Computed Tomography)，ラザフォード後方散乱分光 (Rutherford Backscattering Spectroscopy：RBS)，粒子線励起 X 線測定 (Particle Induced X-ray Emission：PIXE) 等があり [1, 2]，放射線の応用は我々にとって非常に身近なものになっている。特に，加速器から引き出した粒子線（陽子線，炭素線）をガン腫瘍に照射してガン治療を行う粒子線療法は，高度先進医療として

注目を浴び、我が国においても粒子線療法のための加速器施設の建設・計画が各地で進んでいる。放射線治療の中でも特に荷電粒子線療法が重要視されるのは、荷電粒子線に他の放射線には見られない優れた特徴があるからである。その特徴とは図 1.1 に示す Bragg peak である。図にあるように 22 MeV の電子による X 線を用いた放射線療法では深さ数 cm の位置で最大となり、その後、線量分布は深さとともに減衰していく。逆に、荷電粒子線は深さ 20 cm 付近に Bragg Peak と呼ばれる急激なピークを持っており、それ以外の部分では線量が低いことが分かる。実際の治療において、20 cm の位置にガン腫瘍があるとすれば、X 線を利用した治療ではガン腫瘍に対して最大線量の半分程度しかあたらないのに対し、荷電粒子線ではガン腫瘍に対して線量を集中させられることが分かる。さらに、荷電粒子線の場合は入射エネルギーをコントロールすることで患部位置に強度のピークを合わせることができ、実際の治療においても図中にあるように拡大ブラッグピーク (Depth-Modulated Proton Peak) と呼ばれる分布を持たせて照射するのが一般的である。さらに、荷電粒子線は細胞周期や酸素濃度による効果の増減幅が小さいという利点も持っている。粒子線療法において重要となる荷電粒子線の生体への照射効果は、放射線化学や放射線生物学などの分野で主に議論されてきたが、その相互作用全体の起点となっているのは荷電粒子線と標的物質との一次的な相互作用 (電離, 励起) であり、放射線物理学の観点からの研究も重要である。したがって、従来の工学応用分野だけでなく、新しく医療応用の分野からも荷電粒子線と物質との相互作用に関する研究が重要となっている。

1.2 阻止能測定 of 歴史

荷電粒子線が物質中を透過する際、荷電粒子は物質を構成する原子や分子と電離、励起などの相互作用を行い、いわゆる放射線照射効果を物質に与える。全ての工業応用、医療応用はこの照射効果を直接的あるいは間接的に利用している。この照射効果は全て荷電粒子線が標的物質に対して行ったエネルギー付与が起点となって起こり、その総量はエネルギー付与の量によって決まる。このエネルギー付与は荷電粒子にとってはエネルギー損失となる。荷電粒子線 (原子番号 Z_1 , エネルギー E) が標的物質中を進む際に、単位長さ進

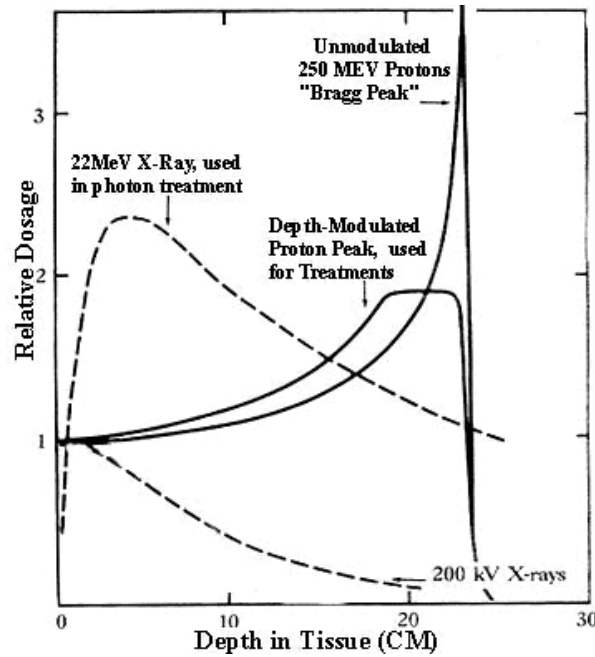


図 1.1 生体深さとエネルギー付与．横軸が深さ方向 (cm)，縦軸が相対線量分布を示す [3]．

む毎に失うエネルギーを阻止能 ($-dE/dx$) と呼ぶ．その標的物質 (原子番号 Z_2) との関係を表すと，以下のようになる．

$$-\frac{dE}{dx} = N\sigma_{\text{STP}}(Z_1, Z_2, E) \quad (1.1)$$

ここで， N が標的物質の密度， σ_{STP} は阻止断面積であり，入射粒子と標的物質によって決まる．荷電粒子が物質中で行うエネルギー損失過程に関する研究はこの阻止能に関する研究として古くから行われている．

本研究において特に重視して取り組んだ液体の水の阻止能に関する測定においては，1952 年に Carvalho らが水中に沈めた α 線源から放出される α 線の飛程を測定した例をはじめとして [4]，主に放射線源 (^{242}Cm , ^{241}Am) から放出された α 線に対する液体の水の阻止能測定が行われてきた [5, 6]．

一方で， α 線以外の荷電粒子線に対する液体の水の阻止能測定の例は非常に限られている．Neuwirth らは，中性子とホウ素の核反応 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ から出る Li から放出される γ 線のドップラーシフトを測定する IDSA(Inverted Doppler Shift Attenuation) 法に

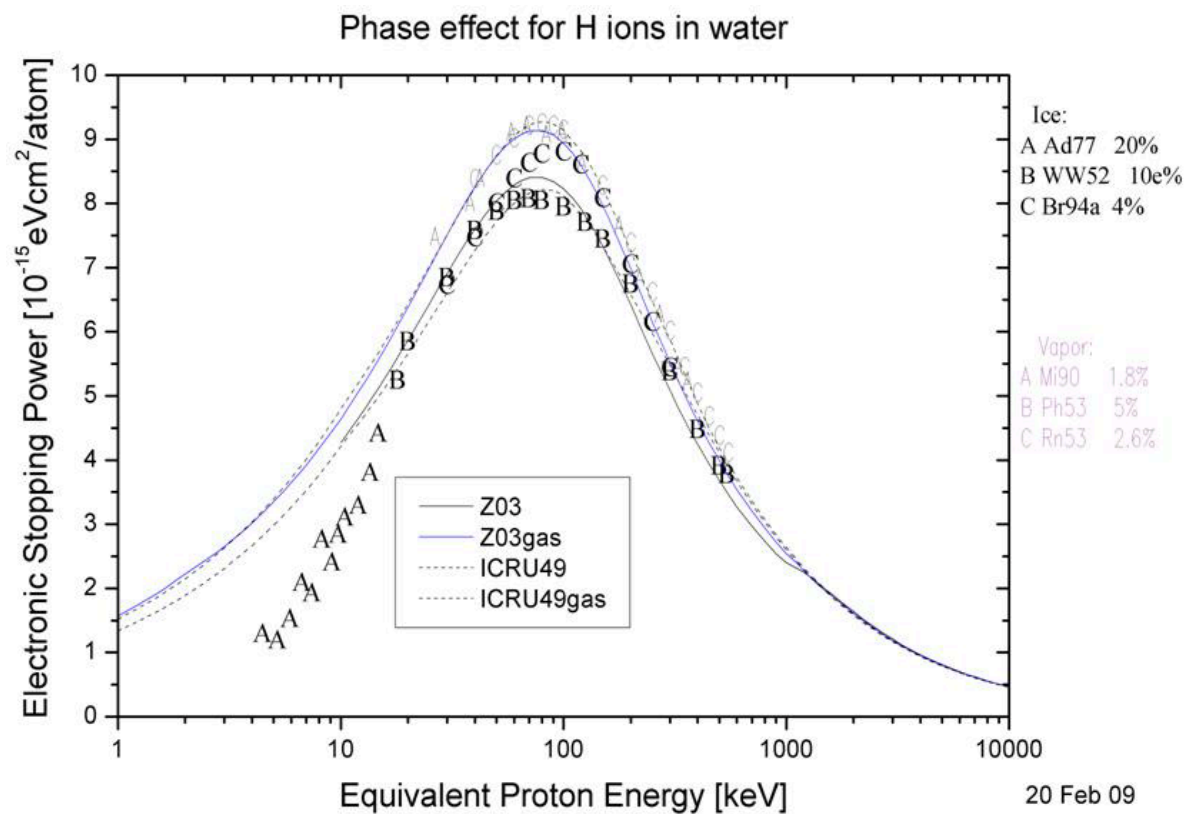


図 1.2 陽子線に対する水の阻止断面積 [9]

よって、20～100 keV/u 程度の Li イオンに対する液体の水の阻止能測定に成功している [7]。また、加速器から引き出された荷電粒子線に対しては、70 MeV の陽子線を液体水標的に照射し、エネルギー損失量から水の平均励起エネルギーを Bichsel らが求めている [8]。しかし、粒子線療法において特に重要な Bragg Peak エネルギー領域、MeV 領域の陽子線に対する液体の水の阻止能測定は本研究において筆者が取り組むまで行われてこなかった。ここで、Helmut Paul 氏が作成した、2009 年 2 月時点での陽子線に対する水の阻止断面積をプロットしたグラフを図 1.2 に示す。図から分かるように、この時点まで陽子線に対する水の阻止断面積データは蒸気と固体の水のデータしかなかった。また、液体の水と同じ凝縮体である氷の阻止断面積測定の値は Wenzel らの測定値 (WW52)[10] と、Bauer らの測定値 (Br94a)[11] らの測定値の間で大きく食い違っているのが現状である。

また、氷の阻止断面面積測定は RBS(Rutherford Back Scattering) 測定によって行われているが、この測定方法は標的表面の状態などの影響を受けやすく、測定値の不確かさが蒸気の阻止断面面積測定に対して大きくなってしまっているという欠点もある [12]。

一方で、半経験的阻止断面面積計算コードである SRIM 2003[13] で求めた液体 (Z03)、気体の水 (Z03gas) の阻止断面面積がプロットされている。この計算値は低エネルギー側において、必ずしも実験結果と一致しているとは言えない。また、ICRU 49[12] の阻止断面面積データの値も液体 (ICRU49)、気体 (ICRU49gas) のそれぞれがプロットされているが、100 keV のブラッグピーク頂点付近において食い違いを見せている。特に注目すべきは、SRIM 2003 で求めた液体の水の阻止断面面積値が 1 MeV 付近で不自然なカーブを見せていることである。この不自然なカーブは、高エネルギー領域における Bethe-Bloch 阻止能公式による阻止断面面積計算値と、Bragg Peak 領域における半経験的な阻止断面面積計算法 [14] による計算値を結ぶ際に、二つの計算法の値の食い違いを埋めるために生じており、本来の阻止断面面積がこの様に不自然なカーブを見せることはあり得ない。そして、この問題は最新バージョンである SRIM 2008 においても解消されていない。一部の例外を除いて、荷電粒子線に対する液体の水の阻止能に関する実験データは α 線に対する実験データに限られていると言って良い。そして、粒子線療法などの応用技術のさらなる発展に向けて、最も基本的な荷電粒子線である陽子線に対する液体の水の阻止能に関する実験的研究が強く求められている [15]。

1.3 本研究の目的と意義

図 1.2 に示したように、半経験的阻止断面面積計算コード SRIM で求めた水の阻止断面面積の値は気体の水と液体の水とでは Bragg Peak 頂点付近で 10 % 程度異なる。これは孤立分子である気体の水と違い、液体の水は自身の持つ極性によって水分子同士で互いに分極作用を起こすため、液体の水分子の電子状態が気体の状態から変化しているためである。この効果は α 線に対する液体の水の阻止断面面積測定で確認されており、陽子線に対する水の阻止断面面積計算でも同様の効果が起こるとされている。しかし、先述したとおり、実際

の陽子線に対する液体の水の阻止断面積は測定されておらず、氷に対する測定値と、気体の水の測定値の間で比較が行われただけである。このような状況は水に限らず、他の物質においても同様である。

この様に液体物質に関する阻止能測定例が少ない理由は、液体の物質に荷電粒子線を照射して阻止断面積を測定することが非常に困難だからである。 α 線の様な放射線源から放出される荷電粒子を除いて、通常、放射線相当 (MeV 領域) のエネルギーを持った荷電粒子線を得るには、加速器によって荷電粒子を加速する必要がある。この時、加速器によって加速された荷電粒子線は高真空あるいは超高真空に保たれたビームラインを通過して、真空槽内に設置された標的物質に照射されるのが普通である。しかし、標的物質が液体の場合、液体をそのまま真空中に導入することは不可能である。例えば液体の水の場合であれば、真空中に入れると直ちに蒸発をはじめ、さらには気化熱によって温度が下がり、固体へと相転移してしまう。また、標的物質が蒸発することは真空環境の悪化を意味する。そもそも、水は真空装置の真空度を悪化させる原因として、高真空槽へ入ることが最も嫌がられる物質の一つである。液体物質を真空槽に導入すると、真空度の悪化によって、最悪の場合、加速器が運転できなくなる可能性もある。

加速器で加速した荷電粒子線を照射するもう一つの手段として、荷電粒子線を大気中に引き出して液体標的に照射する手法がある。しかし、この方法にも大きな欠点がある。それは、荷電粒子線を大気中に引き出す際に、荷電粒子線がビームラインの真空側と大気側を仕切る窓材を通過する際にエネルギーを大きく失ってしまうことである。一般に、窓材としてカプトンフィルムなどが良く使用されるが、1 MeV の陽子線の場合、カプトン中の飛程は 20 μm 程度であるため、市販されている最も薄い厚さ 12.5 μm のカプトンフィルムを使用しても、カプトンフィルム透過後の陽子線のエネルギーは 500 keV 程度にまで落ちてしまうことになる [13]。さらに、窓材を透過する間に荷電粒子線はストラグリングによって、そのエネルギー分布が広がってしまい、単色性を失ってしまうため、そもそもエネルギー損失の測定を精度良く行うことが困難になってしまう。また、大気中で使用可能な検出器の種類が限られているということもこの手法の欠点である。

そこで、本研究では、真空中に液体標的を安定に導入する手法として、極小径のノズル

から液体を真空中に噴出する液体分子線法を用いることにした。液体分子線法は Faubel らにより真空冷却、過冷却現象を研究する手法として導入されたものであるが [16, 17], そこから派生して、イオンやタンパク質の水和構造、液体表面の化学などにも応用されている [18, 19, 20]。これら液体分子線法を用いた先行研究は全てレーザを用いたものであり、当研究室ではこの液体分子線法を荷電粒子線に対するイオンビーム衝突実験に応用した。当研究室ではかねてから液体分子線法を用いて真空槽内に液体標的を用意し、イオンビーム衝突実験を行う実験手法の開発を行ってきており、これまでの代表的な成果として、金田らが二次イオン質量分布測定を行った結果を報告している [21]。このような研究は世界に例を見ないものであり、本実験手法の特徴を生かして、液体物質と放射線の相互作用を解明することが我々の研究室の最終的な目的である。そして、本研究においては、液体物質内で荷電粒子が行うエネルギー損失・散乱過程について調べることを目的として、この液体分子線法を用いたイオンビーム衝突実験手法を液体の水の阻止断面積測定に適用した。具体的には、液体物質内で荷電粒子が行ったエネルギー損失・散乱過程の結果である、液体標的透過後の荷電粒子線のエネルギー損失分布、散乱角度分布を測定した。さらに、この測定結果についてモンテカルロシミュレーションによる再現計算を行い、実験結果を再現するのに最適な阻止断面積を求めた。この手法により、これまで全く手つかずであった、100~2000 keV までの陽子線に対する様々な液体物質の阻止断面積の測定が可能となり、液体物質中における荷電粒子線のエネルギー損失・散乱過程に関する実験的研究を系統的に行うことができた。特に大きな成果として、世界で初めて MeV 領域の陽子線に対する液体の水の阻止断面積測定に成功した。さらに、この測定方法を液体のアルコールにも適用し、これまで α 線に対しての阻止断面積データでのみ議論されてきた Bragg 加法則が陽子線においても成立するか、また α 線に対する阻止断面積と陽子線に対する阻止断面積の比較などエネルギー損失過程に関する基礎的な考察を行うことができた。また、エネルギー損失と同様、液体物質中において荷電粒子が受ける散乱の測定も行っており、この結果から、液体標的内で荷電粒子がうける際の散乱現象とその結果がエネルギー損失とどのような相関関係にあるかを考察することができた。

まとめとして、本研究は液体と荷電粒子線の相互作用の解明に向けて、まず、エネル

ギー付与の観点からせまるべく，荷電粒子線の液体標的内におけるエネルギー損失・散乱過程の解明を主目的として研究を行った．そして，荷電粒子線の液体標的内におけるエネルギー損失・散乱過程について理解することは，将来的な荷電粒子線の工学・医療応用の発展において意義のある重要な課題であるという考えの下に本研究を行った．

1.4 本論文の構成

本論文は全 9 章からなる．第 1 章では液体の水に関する阻止能研究の現状を説明し，そのことをふまえて本研究の目的と意義を述べた．続く第 2 章では阻止能に関する理論部分の説明を行う．ここでは主に，電子的阻止断面積に関する理論，特に阻止断面積計算において最も重要な Bethe-Bloch の阻止能公式とその各種補正項について説明する．第 3 章では本研究で使用した実験装置のセットアップや液体分子線について説明する．第 4 章では本研究で実験データの解析に使用したモンテカルロシミュレーション計算について概説する．第 5 章ではモンテカルロシミュレーションのリファレンスデータを得る目的で行った Al ワイヤーに陽子線を照射した実験結果から，実験の誤差評価を行った．続く第 7, 6 章で第 3 章で説明したセットアップを用いて行った実験結果を紹介し，その考察を行う．さらに第 8 で陽子線に対する液体アルコールの阻止断面積測定の結果について説明し，考察を行う．最後に第 9 章で全体の内容をまとめ，本論文の総括とする．

第 2 章

エネルギー損失・散乱理論

荷電粒子がある標的物質に入射すると、標的物質を構成する原子・分子との衝突相互作用（電離・励起・散乱）によってエネルギーを失う。ある厚みを持った標的に荷電粒子が入射する場合、荷電粒子は透過距離に応じてエネルギーを失い、散乱を受けて標的を透過してくるが、この時のエネルギー損失や、散乱の程度には個々の標的原子と荷電粒子の衝突の重ね合わせが現れている。本章ではまず基本的な衝突問題である二体衝突について解説した後、核的・電子的阻止能の式を導出する。さらに、そこからエネルギー損失・散乱理論について詳細に解説する。

2.1 二体衝突

今、電荷 Q_1 、質量 M_1 、速度 v の荷電粒子が原子番号 Z_2 、質量 M_2 、密度 N の標的物質に入射する場合を考える。入射粒子は標的原子との相互作用（電離、励起、散乱など）を行い、エネルギーを失う。この時のある相互作用（個々の相互作用を区別するために i を添え字につける。）によって荷電粒子が失うエネルギーを T_i とし、それぞれの T_i の断面積を σ_i とすると、荷電粒子が単位距離あたりに失うエネルギー、阻止能（ $-dE/dx$ ），は以下の様に表される。

$$-\frac{dE}{dx} = N \sum_i \sigma_i(Q_1, M_1, v, Z_2, M_2) T_i \quad (2.1)$$

式 (2.1) の $\sum_i \sigma_i T_i$ の項は積分の形に置き換えることができ、最終的に、

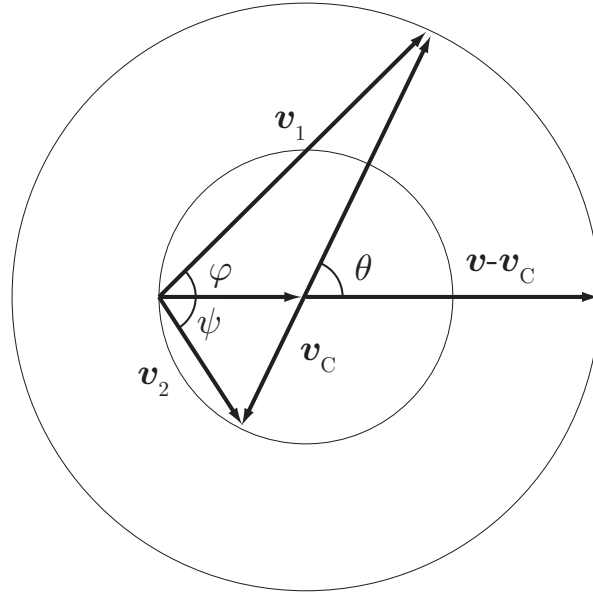
$$-\frac{dE}{dx} = N \int T \frac{d\sigma}{dT} dT \quad (2.2)$$

の形で表される。以上で、厚みを持った標的を荷電粒子が透過する際のエネルギー損失が個々の相互作用におけるエネルギー損失の積分によって表されることが分かった。

ここで、(2.1) について、補足を2つ述べておく。まず、荷電粒子の電荷 Q_1 は加速器を使った実験の場合、加速電圧とエネルギー・質量選別マグネットなどから、普通、明らかな状態で実験を行うことが多い。しかし、標的入射後の荷電粒子は標的原子と電子損失・捕獲反応を行うため、入射後の荷電粒子の電荷を明らかにすることはできない。そこで、一般的には標的内の荷電粒子の電荷の平均的描像である有効電荷 (effective charge) を考えることで取り扱う。有効電荷については、後の節で取り扱う。なお、水素原子についてはボーア速度 v_0 以上の速度の水素原子が標的に入射した場合、付随電子は失われると言われており、 $v \gg v_0$ では $Q_1 = 1.0$ であると考えて良い。

次に、標的物質の状態についての補足である。式 (2.1) は個々の相互作用が独立におきることを前提としている。気体の様に希薄な標的の場合、個々の標的原子は隣の原子と十分に離れているため、それぞれの相互作用は互いに独立している。しかし、固体のような凝縮体の場合、分極などの影響によって、互いの標的原子の電子状態が変化し、結果としてエネルギー損失の量が変化する。また、格子構造を持つ標的物質の場合、格子構造に対する荷電粒子の入射方向によって、同じ衝突径数の相互作用ばかりが起きてしまう場合があり、注意が必要である。なお、ここでは、結晶構造を持たない標的物質（非晶質固体、液体、気体）を仮定して説明を進める。

標的を透過する際の入射粒子のエネルギー損失量を求めるために、まず個々の2体衝突におけるエネルギー損失 T とその衝突微分断面積 $d\sigma$ の関係について考察する。今、実験室系において、電荷 Q_1 、質量 M_1 、速度 v の粒子が、静止している電荷 Q_2 、質量 M_2 の標的粒子に衝突した場合における、衝突後の入射粒子の散乱角度とエネルギーについて考える。衝突問題を取り扱う場合、重心系で取り扱った方がより簡単である。重心の速度

図 2.1 ニュートンダイアグラム ($M_1 < M_2$ としている)

v_C は ,

$$v_C = \frac{M_1}{M_1 + M_2} v \quad (2.3)$$

で表され , 重心系において重心の周りの全運動量の和は 0 であるから ,

$$\begin{aligned} p_{1,\text{before}}^C &= -p_{2,\text{before}}^C \\ p_{1,\text{after}}^C &= -p_{2,\text{after}}^C \end{aligned} \quad (2.4)$$

となり , 重心系において入射粒子と標的粒子の運動量の絶対値は等しい . さらにエネルギー保存則から ,

$$|p_{1,\text{before}}^C| = |p_{1,\text{after}}^C| = |p_{2,\text{before}}^C| = |p_{2,\text{after}}^C| \quad (2.5)$$

となることが分かる . 二体衝突問題を考える上でもう一つ便利な手法として , 重心系と実験室系の関係を簡単に表すことのできるニュートンダイアグラムがある . 入射粒子と標的粒子の衝突後の速度が v_1, v_2 で散乱された場合のニュートンダイアグラムを図 2.1 に示す . なお , 入射粒子と標的粒子の実験室系における散乱角度をそれぞれ φ, ψ とし , 重心

系における入射粒子の散乱角度を θ で示している．図より，重心系，実験室系の散乱角度の間には以下の様な関係があることが分かる．

$$2\psi + \theta = \pi$$

$$\tan \varphi = \frac{(|\mathbf{v}| - |\mathbf{v}_C|) \sin \theta}{\mathbf{v}_C + (|\mathbf{v}| - |\mathbf{v}_C|) \cos \theta} = \frac{M_2 \sin \theta}{M_1 + M_2 \cos \theta} \quad (2.6)$$

以上の式から，いくつかの特別な場合について整理しておく．散乱角度 θ が非常に小さい場合，

$$\psi \approx \frac{\pi}{2}$$

$$\varphi \simeq \frac{M_2}{M_1 + M_2} \theta \quad (2.7)$$

となり，次に，入射粒子が電子のように非常に質量が小さい場合 ($M_1 \ll M_2$) は，

$$\varphi \simeq \theta \quad (2.8)$$

となる．最後に，入射粒子と標的粒子の質量が等しい場合は ($M_1 = M_2$) ，

$$\varphi = \frac{\theta}{2} \quad (2.9)$$

となる．

散乱角度の次に，エネルギー損失の関係について考える．入射粒子が散乱によって失うエネルギー T はすなわち標的粒子の散乱後のエネルギーに等しい．図 2.1 より，標的粒子の散乱後の速さ $|\mathbf{v}_2|$ は，

$$|\mathbf{v}_2| = 2|\mathbf{v}_C| \sin \frac{\theta}{2} \quad (2.10)$$

なので， $T = M_2 \mathbf{v}_2^2 / 2$ だから，

$$T = \frac{1}{2} M_2 (2\mathbf{v}_C \sin \frac{\theta}{2})^2 = 4 \frac{M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} \frac{1}{2} M_1 \mathbf{v}^2 \sin^2 \frac{\theta}{2} \quad (2.11)$$

となり，整理すると，

$$T = T_{\max} \sin^2 \frac{\theta}{2}, \quad T_{\max} = 4 \frac{M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E \quad (2.12)$$

となる．ここで E は入射粒子の入射エネルギーである．式 (2.12) から分かるように，入射粒子が散乱によって失うエネルギーは散乱角度に依存する．さて，荷電粒子が標的粒子と行うクーロン相互作用はラザフォード散乱と考えることができる．ここで，散乱角度は衝突径数 (impact parameter) p に依存し，散乱角 θ と衝突径数 p の関係は以下のように表される．

$$\tan \frac{\theta}{2} = \frac{b}{2p} \quad (2.13)$$

ここで， b は衝突直径 (collision diameter) であり，

$$b = \frac{Q_1 Q_2}{\frac{1}{2} \mu v^2} \quad \mu = \frac{M_1 M_2}{M_1 + M_2} \quad (2.14)$$

となる．式 (2.12)，(2.13) および三角関数の関係式 $\sin^2 \theta = \tan^2 \theta / (1 + \tan^2 \theta)$ から，衝突径数 p とエネルギー損失 T の関係式，

$$T(p) = \frac{2Q_1^2 Q_2^2}{M_2 v^2} \frac{1}{p^2 + \left(\frac{b}{2}\right)^2} \quad (2.15)$$

を求めることができる．この式 (2.15) から，エネルギー損失が $T \sim T + dT$ に対応する微分断面積 $d\sigma$ に関する式を得ることができる．

$$dT = -\frac{2Q_1^2 Q_2^2}{M_2 v^2} \frac{2p dp}{\left[p^2 + \left(\frac{b}{2}\right)^2\right]^2} = -\left(\frac{2Q_1^2 Q_2^2}{M_2 v^2}\right)^{-1} T^2 2p dp \quad (2.16)$$

$$\begin{aligned} d\sigma &= 2\pi p dp = -\pi \frac{2Q_1^2 Q_2^2}{M_2 v^2} \frac{dT}{T^2} \\ \frac{d\sigma}{dT} &= -\frac{2\pi Q_1^2 Q_2^2}{M_2 v^2} \frac{1}{T^2} \end{aligned} \quad (2.17)$$

この関係式は”Thomson formula” と呼ばれており，古典的ラザフォード散乱の関係式から導かれているが，量子力学におけるボルン近似から導かれた式と一致する．

2.2 弾性衝突と非弾性衝突

前節において説明したように，荷電粒子がある標的物質に入射すると，標的物質を構成する原子・分子との衝突相互作用（電離・励起・散乱）によってエネルギーを失う．こ

のエネルギー損失は入射粒子と標的物質の内部エネルギーが変化しない弾性衝突 (elastic collision) によるものと、いずれかの内部エネルギーが変化する非弾性衝突 (inelastic collision) によるものの2種類に区別することができる。核反応が起こるような場合を除いて、内部エネルギーは電子結合状態の励起とみてよい。つまり、弾性衝突は電子励起が起こらずに、入射粒子の損失エネルギーが標的原子の運動エネルギーに変わる場合を指し、非弾性衝突は入射粒子の損失エネルギーが標的原子の運動エネルギーではなく、電子状態の励起に使われる場合を指す。

一方、阻止能 (stopping power) とは荷電粒子が単位長さ進む間に標的物質との相互作用により失うエネルギーである。放射線化学や放射線生物学の分野では LET (Linear Energy Transfer) と呼ぶことが多いが、これはエネルギーを与える側と与えられる側の立場の違いによるものである。先に述べた標的原子との弾性衝突による阻止能を核的阻止能、非弾性衝突による阻止能を電子的阻止能と呼ぶ。

2.3 核的阻止能

核的阻止能を考える場合、まず標的原子核と入射粒子の間のクーロン力がどこまで及ぶかを考える必要がある [22]。今、簡単のために水素原子との衝突を考えてみる。図 2.2 に入射粒子がボーア半径 a_0 よりも大きい衝突径数で衝突する場合と、小さい衝突径数で衝突する場合の模式図を示す。衝突径数がボーア半径より大きい場合 ($p > a_0$)、電子雲によって核の電荷が遮蔽されるため、入射粒子から見た標的原子核の見かけの電荷は 0 となる。そのため、入射粒子と標的原子核の間のクーロン相互作用は起こらないと考える。これに対し、衝突径数がボーア半径より小さい場合 ($p < a_0$) は、入射粒子が電子雲を透過して標的原子核との間でクーロン相互作用を行うと考える。

核的阻止能はボルン近似が適用できる範囲では、2.1 節で述べたラザフォード散乱から導いた微分断面積で個々の弾性衝突を考えることが出来る。標的原子の原子番号を

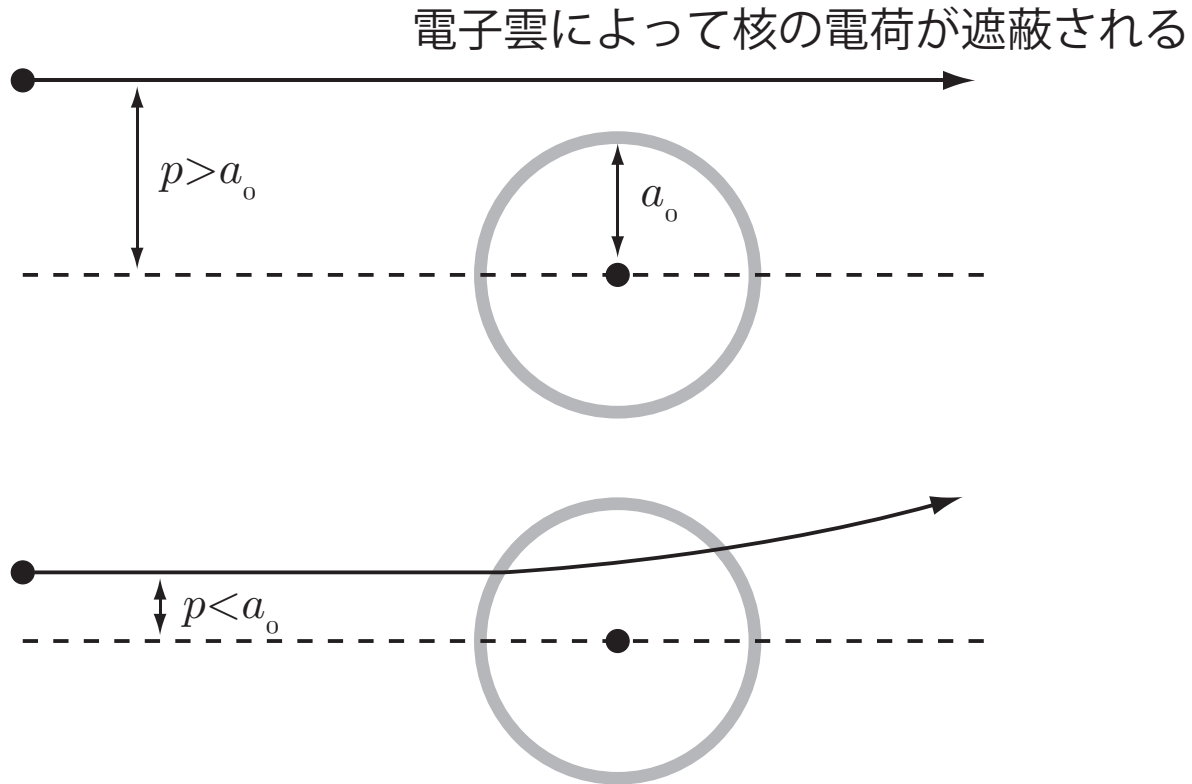


図 2.2 衝突径数 p がボーア半径 a_0 より大きい場合 (上) と, 小さい場合 (下)

$Z_2(Q_2 = Z_2e)$ とした時, 式 (2.2) と (2.12), (2.17) より, 核的阻止能は

$$\begin{aligned}
 -\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{nuclear}} &= -N \int T d\sigma \\
 &= N \int_0^{a^2} \pi d(p^2) \frac{2Q_1^2 Z_2^2 e^2}{M_2 v^2} \frac{1}{p^2 + \left(\frac{b}{2}\right)^2} \\
 &= \frac{4\pi Q_1^2 Z_2^2 e^2}{M_2 v^2} N \ln \left(\frac{2\sqrt{a^2 + \left(\frac{b}{2}\right)^2}}{b} \right)
 \end{aligned} \tag{2.18}$$

となる．ここで a は標的原子核の電場が及ぶ半径を表すスクリーニング半径である．スクリーニング半径については Tormas-Fermi 半径など様々な物が提案されている [23]．特に, 入射粒子が重粒子 ($M_1 > m_e$) の場合, 入射粒子の原子番号を $Z_1(Q_1 = Z_1e)$ とする

と、式 (2.18) は、

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{nuclear}} = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2^2 e^4}{M_2 v^2} N \ln \left(\frac{2a}{b_n} \right) \quad (2.19)$$

と簡単にすることができる．ここで、

$$b_n = \frac{2Z_1 Z_2 e^2}{\mu v^2} = 2Z_1 Z_2 \left(\frac{v_0}{v} \right)^2 \frac{m_e}{\mu} a_0 \ll a \quad (2.20)$$

であり、 $v/v_0 \gtrsim 0.1 Z_{\text{max}}^{2/3}$ とする． v_0 はボーア速度であり、 Z_{max} は原子のうち、原子番号の大きい方の原子番号である．

2.4 電子的阻止能

次に、電子的阻止能について説明する．ここでは標的原子が持つ電子の速度は入射粒子の速度に対して非常に小さいとして考える．前節同様に、標的原子 (原子番号 Z_2) の数密度を N とすると、電子の数密度は $Z_2 N$ となるから、式 (2.2) と (2.12)、(2.17) より、

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{\text{electron}} = Z_2 N \frac{2(Z_1 e)^2 e^2}{m_e v^2} \int_{(\frac{b_e}{2})^2}^{p_{\text{max}}^2} \pi \frac{dx}{x} \quad (2.21)$$

となる．ここで、 $Q_1 = Z_1 e$ 、 $x \equiv (\frac{b_e}{2})^2 + p^2$ とした． p は衝突径数であり、積分の上限を p_{max}^2 としている．核的阻止能では積分の上限を原子核との間のクーロン相互作用が及ぶ範囲、スクリーニング半径 a としたが、電子的阻止能の場合、明確に電子とのクーロン相互作用が及ぶ範囲を決めることはできない．今、 $p_{\text{max}} \gg b_e$ として、式 (2.21) を整理すると、

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{\text{electron}} = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v^2} N \ln \left(\frac{2p_{\text{max}}}{b_e} \right) \quad (2.22)$$

となる．ここで， $M_1 \gg m_e$ であり， $\mu = m_e$ としている．核的阻止能 (2.19) と電子の阻止能 (2.22) を比較すると，

$$\begin{aligned} -\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{electron}} / \left(-\frac{dE}{dx}\right)_{\text{nuclear}} &= \frac{M_2}{m_e} \frac{1}{Z_2} \frac{\ln\left(\frac{2p_{\max}}{b_e}\right)}{\ln\frac{2a}{b_n}} \\ &= 2 \frac{M_p}{m_e} \frac{\ln\left(\frac{2p_{\max}}{b_e}\right)}{\ln\frac{2a}{b_n}} = 4000 \frac{L_e}{L_n} \end{aligned} \quad (2.23)$$

となる．ここで，対数項の L_e/L_n の比は通常 $1/2$ 程度であり，上の式から核的阻止能に対して，電子の阻止能は 10^3 倍程度の大きさを持つことが分かる．

2.5 Bethe-Bloch の阻止能公式

ここまでは古典論に基づいて，電子の阻止能に関する一般的な解説を行ってきた．高速荷電粒子と原子との衝突における非弾性散乱の微分断面積 $d\sigma$ について，量子論的に取り扱う場合は，ボルン近似を適用して解くことが多い．ここでは，ボルン近似を適用して求められた Bethe-Bloch の阻止能公式について説明する．速度 v ，電荷 $Z_1 e$ の荷電粒子が，原子番号 Z_2 の標的原子と衝突し，電子系が基底状態から励起状態 n へ遷移する場合のボルン近似によって得られる微分断面積 $d\sigma_n$ は一般化振動子強度 $f_{n0}(T)$ を用いて，

$$d\sigma_n = \frac{2\pi Z_1^2 e^4}{m_e v^2} \frac{dT}{T^2} f_{n0}(T) \quad (2.24)$$

となる．なお，荷電粒子から標的原子への運動量移行を $\hbar \mathbf{q}$ として，一般化振動子強度 $f_{n0}(T)$ は，

$$f_{n0}(T) = \frac{E_n - E_0}{Z_2 T} \left\langle |F_{n0}(\mathbf{q})|^2 \right\rangle_{\text{AV}} \quad (2.25)$$

で表される．ここで， $F_{n0}(\mathbf{q})$ は電子系の基底状態から励起状態 n への遷移を表す行列要素であり， $E_n - E_0$ は励起エネルギーである．電子の位置ベクトル \mathbf{r}_j を用いると，

$$F_{n0}(\mathbf{q}) = \left\langle n \left| \sum_j \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j) \right| 0 \right\rangle \quad (2.26)$$

と書ける．ここで，式 (2.25) の $\langle \rangle_{\text{AV}}$ は q の方向依存性を無くす平均操作を意味し，その結果， q は大きさ q のみの関数となる．ここでは，高速荷電粒子と標的原子の衝突において，特別な配向を考えることはないのでこの様に取り扱って問題はない．(2.24) はラザフォード散乱から求めた (2.17) 式の微分断面積に，量子論的效果を示す項が新たに加わったことが分かる．

$$d\sigma_n = f_{n0}(T)d\sigma_R, \quad d\sigma_R = \frac{2\pi Z_1^2 e^4}{m_e v^2} \frac{dT}{T^2} \quad (2.27)$$

ここで，原子番号 Z_2 の標的原子で構成される標的物質 (電子の数密度 $Z_2 N$) の電子的阻止能を求める．(2.2) 式に，(2.27) を代入し，全ての電子の励起状態について和を取れば，これが量子論的效果を含んだ電子的阻止能 S_e となるはずであるから，

$$S_e = Z_2 N \sum_n \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T d\sigma_R f_{n0}(T) \quad (2.28)$$

となる．ここで， $T_{\max} = 2m_e v^2$ ， $T_{\min} = (E_n - E_0)^2 / 2m_e v^2$ である．(2.28) 式の積分は積分の下限に n を含むため，和記号と積分記号を入れ替えたりすることができず，簡単には求めることができない．そこで $T_{\min} < T_0 < T_{\max}$ を導入し，積分範囲を遠隔衝突 ($T_{\min} < T < T_0$) と近接衝突 ($T_0 < T < T_{\max}$) の2つに分ける．通常 T_0 は対応する q の値 q_0 が電子の平均軌道半径 $\langle r \rangle$ の逆数より小さな値となるように選ぶ．遠隔衝突の時， $|0\rangle$ と $|n\rangle$ の直交性 ($\langle 0|n\rangle = 0$) を使えば，

$$F_{n0}(\mathbf{q}) = \left\langle n \left| \sum_j (1 - i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j + \dots) \right| 0 \right\rangle = -i\mathbf{q} \left\langle n \left| \sum_j \mathbf{r}_j \right| 0 \right\rangle \quad (2.29)$$

と近似され， $\langle |F_{n0}(\mathbf{q})|^2 \rangle_{\text{AV}}$ を q と q を含まない項に分離することができる．この近似は双極子近似 (dipole approximation) と呼ばれる．この結果を，(2.25) に代入すると，

$$f_{n0}(T) \approx f_{n0} = \frac{2m_e}{\hbar^2 Z_2} (E_n - E_0) \left| \left\langle n \left| \sum_j \mathbf{r}_j \right| 0 \right\rangle \right|^2 \quad (\because T = \hbar^2 q^2 / 2m_e) \quad (2.30)$$

となり, f_{n0} が T によらなくなり, 積分記号の前に出すことができる. 従って, 遠隔衝突の範囲における電子的阻止能 $S_{e,\text{dist}}$ は,

$$\begin{aligned} S_{e,\text{dist}} &= Z_2 N \sum_n f_{n0} \int_{(E_n - E_0)^2 / 2m_e v^2}^{T_0} T d\sigma_R \\ &= \frac{2\pi Z_1^2 e^4}{m_e v^2} Z_2 N \sum_n f_{n0} \ln \frac{T_0}{(E_n - E_0)^2 / 2m_e v^2} \end{aligned} \quad (2.31)$$

となる.

近接衝突 ($T_0 < T < T_{\text{max}}$) の場合の積分については, 積分記号と \sum 記号の順番を交換できるので, 比較的容易である. Thomas-Reiche-Kuhn の総和則,

$$\sum_n f_{n0}(T) = 1 \quad (2.32)$$

を用いて,

$$\begin{aligned} S_{e,\text{close}} &= Z_2 N \int_{T_0}^{2m_e v^2} T \sigma_R \sum_n f_{n0}(T) = Z_2 N \int_{T_0}^{2m_e v^2} T d\sigma_R \\ &= \frac{2\pi Z_1^2 e^4}{m_e v^2} Z_2 N \ln \frac{2m_e v^2}{T_0} \end{aligned} \quad (2.33)$$

となる. 2 つの積分の結果の和をとれば,

$$S_e = S_{e,\text{dist}} + S_{e,\text{close}} = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{m_e v^2} Z_2 N \sum_n f_{n0} \ln \frac{2m_e v^2}{E_n - E_0} \quad (2.34)$$

$$= \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{m_e v^2} Z_2 N \ln \frac{2m_e v^2}{I} \quad (2.35)$$

となり, Bethe の阻止能公式としてよく知られている式となる. ここで, I は平均励起エネルギーと呼ばれ,

$$\ln I = \sum_n f_{n0} \ln(E_n - E_0) \quad (2.36)$$

で定義される. 実際の解析に使用される理論式は様々な補正項を含んだ複雑なものとなる. それらの補正項を含んだ形の阻止能公式を「Bethe-Bloch の阻止能公式」と呼び,

$$S_e = \left(-\frac{dE}{dx} \right)_{\text{electron}} = \frac{4\pi a_0^2 m_e c^2 Z_1^2}{\beta^2} Z_2 N L(\beta) \quad (2.37)$$

$$L(\beta) = L_0(\beta) + Z_1 L_1(\beta) + Z_1^2 L_2(\beta) \quad (2.38)$$

のように表される． $L(\beta)$ は Stopping number と呼ばれ， Z_1 への依存性から， L_0, L_1, L_2 に分類される．特に阻止能を大きく決める $L_0(\beta)$ は Primary Stopping Number と呼ばれ，

$$L_0(\beta) = \ln \frac{2m_e c^2 \beta^2}{1 - \beta^2} - \beta^2 - \ln I - \frac{C}{Z_2} - \frac{\delta}{2} \quad (2.39)$$

で表される．ここで I は平均励起エネルギーであり，標的物質の性質を表わす最も基本的な物理量である．第 1,2 項は相対論的補正項 [24, 25]， C/Z_2 は殻補正 (shell correction) 項である．最後の $\delta/2$ は密度効果を表す補正項で，相対論的な速度の入射イオンが原子密度の高い固体中を通過する際に重要な補正項であるが，本研究で想定しているエネルギー領域である MeV エネルギー領域では非常に小さいの無視して良い．

$Z_1 L_1(\beta)$ は Barkas 補正項 (Barkas correction term) と呼ばれ，入射イオンが標的原子の分極を起こす効果を表す．最後に $Z_1^2 L_2(\beta)$ はブロッホ補正項 (Bloch correction term) と呼ばれ，近接衝突に由来し，原子番号の大きな入射粒子に対して重要となる．以下の小節では，各物理量や補正項について説明する．

2.5.1 平均励起エネルギー

平均励起エネルギーは Bethe-Bloch の阻止能公式において最も重要な物理量である．この値は標的物質の性質のみによって決まる．このことは Bethe の公式を導く際に使用した微分断面積 $d\sigma$ の式が入射粒子と標的原子による項の積で表されていることから明らかである．平均励起エネルギーは阻止能研究から求める方法と，分光学的研究から振動子強度分布を測定して求める方法の二通りがある．軽イオンに対する阻止能では，二つの方法で求めた平均励起エネルギーは良く一致することが知られている．

本研究で中心として取り扱う水の平均励起エネルギーについては，蒸気と凝縮相（液体・固体）についての二つの値が提案されている．ICRU 49[12] では，液体の水の平均励起エネルギーとして $I_{\text{water}} = 75.0$ eV が提案されており，分光学的研究からは $I_{\text{water}} = 80.8$ eV などの値が提案されており，阻止能研究の立場からは Bichsel，平岡 [8] らが $I_{\text{water}} = 78.0$ eV を 70 MeV 陽子線に対する液体の水の阻止能測定から得ている．

2.5.2 殻補正項

ベーテの阻止能公式はボルン近似を適用して求めているが、ボルン近似には適用条件があるため、入射粒子のエネルギーが低くなると、ボルン近似が適用できなくなる。すなわち、全ての電子が励起されることを前提とした、(2.32) 式の総和則が成り立たなくなってしまう。一般に、ボルン近似の適用条件として、入射粒子のエネルギー E が

$$E \gg I \frac{M_1}{m_e} \quad (2.40)$$

となる必要がある。ここで、 I は標的電子のイオン化エネルギーとする。例えば、水素原子であれば、入射粒子のエネルギー E は $E \gg 25 \text{ keV}$ である必要があることになる。従って、MeV エネルギー領域以下の入射粒子に対する阻止能を Bethe の阻止能公式で求めるにはこの分の補正、「殻補正項」を差し引くことになる。実際の計算では、多電子原子については各殻毎にイオン化エネルギーが異なるので、殻補正項の計算は殻毎の電子について行うことになる。具体的には各電子殻の電子が阻止能に寄与しない分 C_K, C_L, C_M をそれぞれ次の式の様に足しあわせて求める。

$$C = C_K + C_L + C_M + \dots \quad (2.41)$$

殻補正項の計算方法には Hydrogenic Wave Function を用いて Walske[26, 27] が求めた殻毎の阻止断面積をもとに決める Bichsel[28] の方法と、Bonderup の方法の二つが良く使用されているが、どちらの方法もおおむね同じ程度の殻補正項の値を与えることが知られている [12]。

本研究ではこの殻補正項の計算について、Bichsel の方法を使用したので、その計算法について説明する。まず、Walske らは i 番目の電子殻の Stopping Number($B_i(\theta_i, \eta_i)$) について計算し、次のように表した。

$$B_i(\theta_i, \eta_i) = S_i(\theta_i) \ln \eta_i + T_i(\theta_i) - C_i(\theta_i, \eta_i) \quad (2.42)$$

ここで、 $C_i(\theta_i, \eta_i)$ がその電子殻の殻補正項に相当する。 θ_i は電子殻のエネルギー E_i と

原子	遮蔽定数: d_i		結合エネルギー: E_i [eV] (電子数)			
	d_K	d_L	1s	2s	2p(1/2)	2p(3/2)
H	0.0		13.6 (1)			
C	0.3	2.82	288.0 (2)	16.59 (2)	11.26 (2)	
N	0.3	3.16	403.0 (2)	37.3 (2)	20.33 (2)	14.53 (1)
O	0.3	3.53	543.1 (2)	41.6 (2)	28.48 (2)	13.62 eV(2)

表 2.1 各電子殻の結合エネルギー E_i と遮蔽定数 d_i . 結合エネルギーについては CRC. Handbook of Chemistry and Physics から引用 [29] .

原子番号 Z によって次の様に決める [26, 27] .

$$\theta_i = \frac{E_i}{\mathcal{R}(Z - d_i)^2 n^{-2}} \quad (2.43)$$

なお, $\mathcal{R} = 13.6$ eV であり, d_i は核電荷の遮蔽定数, n は電子殻の主量子数である. 次に, η_i は,

$$\eta_i = \frac{m_e c^2 \beta^2}{\mathcal{R}(Z - d_i)^2} = \frac{18787 \beta^2}{(Z - d_i)^2} \quad (2.44)$$

で表される. 表 2.1 に本研究で使用した各原子の d_i, E_i を示す. $S_i(\theta_i), T_i(\theta_i)$ の値については, G. S. Khandelwal によって計算されており, η_i が大きい領域における $C_i(\theta_i, \eta_i)$ の関数も与えられている. 一方で, Walske らの計算した数値は η_i が小さい領域では無限大に発散してしまうため, η_i が小さい領域 ($\eta_i < 5$) については適用できない. Khandelwall は η_i が小さい領域の $B(\theta_i, \eta_i)$ についても計算しており, η_i が小さい領域の $C_i(\theta_i, \eta_i)$ は Khandelwall の計算した $B_i(\theta_i, \eta_i)$ の数値表から逆算して求める [30] .

$$C_i(\theta_i, \eta_i) = S_i(\theta_i) \ln \eta_i + T_i(\theta_i) - B_i(\theta_i, \eta_i) \quad (2.45)$$

以上の様にして求めた各電子殻の C_i の値を電子数に応じて和を取って, 殻補正項とした.

$$C = C_K + \frac{n_{2s}}{8} C_{2s} + \frac{n_{2p(1/2)}}{8} C_{2p(1/2)} + \frac{n_{2p(3/2)}}{8} C_{2p(3/2)} \quad (2.46)$$

ここで, n_{2s} , $n_{2p(1/2)}$, $n_{2p(3/2)}$ は各電子殻に含まれる電子数であり, 表 2.1 に示した. H 原子については K 殻に電子が 1 個しか含まれないので, 計算した C_K の値を 1/2 倍して用いる.

2.5.3 Barkas 補正項

Barkas らは入射エネルギーの等しい Σ^+ 粒子と反粒子 Σ^- の飛程が異なることを発見し, 阻止能が Z_1 の符号に依存することを確認した. この Barkas 効果と呼ばれる現象は, Barkas 自身らの手によって, ボルン近似の 2 次の項から生じることが示され, この補正項は Barkas 補正項と呼ばれるようになった. また, Z_1^3 に比例することから Z_1^3 項とも呼ばれる.

Barkas 効果の現象の理解としては, 入射粒子の電荷の正負に対する標的電子の応答の違いと捉えることができる. つまり, 標的原子に入射粒子が近づくと, 標的周辺に存在する標的電子が入射粒子の電場を感じて移動し, 原子に分極が生じる. 入射粒子の電荷が正である場合には電子が入射粒子に引き寄せられるので, その分, エネルギー損失は大きくなる. 逆に, 入射粒子の電荷が負の場合は電子は逆方向に動くのでエネルギー損失は小さくなると考えられている.

Barkas 補正項の計算法については, Ashley[31, 32] らによって提案された手法が ICRU 49 などで用いられている. Ashley らは, 軌道電子を調和振動子として見立て, 分極による変位を考慮した阻止能の計算を行った. Ashley の得た L_1 は

$$L_1(\beta) = \frac{\gamma F(b/x^{1/2})}{Z_2^{1/2} x^{3/2}}, \quad x = \frac{\beta^2}{Z_2 \alpha^2} \quad (2.47)$$

と表され, ここで $\alpha \equiv 1/137.036$ は微細構造定数である. $F(b/x^{1/2})$ の値については, Ashley ら自身が計算した値が数値表として出版されている [32]. 本研究では, Ashley[31] の方法に基づいて計算された数値表を GEANT4[33] 内から引用し, 計算に用いた. γ はボンダラップの自由電子ガスモデル [34] によって求められた補正係数であり, ICRU 49 では $\gamma = 1.29$ が採用されている [12]. b は最小の衝突径数であり, 実験値について適合するように設定する数字である. Ashley は $b = 1.8$ を使用しており, ICRU 49 では化合物

中の H, C, N, O などに対して同じく $b = 1.8$ を使用している [35, 12] . また, b の値については, 計算によって求める方法も Ashley によって提案されており,

$$b = \eta_0 \chi (1 + 6.02 Z_2^{-1.19}), \quad \eta_0 \chi \approx 0.8 \quad (2.48)$$

である [31] .

Ashley やその他の理論計算モデルをもとに, 取り扱いやすい経験的な式として, J. F. Ziegler は次のような式を提案している [36] .

$$\begin{aligned} L_{\text{low}} &= 0.00182E \\ L_{\text{high}} &= 19.6E^{-0.72} \\ L_1(E) &= \frac{L_{\text{low}}L_{\text{high}}}{L_{\text{low}} + L_{\text{high}}} \end{aligned} \quad (2.49)$$

上の式は, L_1 の Z_2 依存性を考慮しない式であり, Z_2 依存性を考慮した式としては,

$$\begin{aligned} L_{\text{low}} &= 0.001E \\ L_{\text{high}} &= \frac{1.5}{E^{0.4}} + \frac{45000}{Z_2 E^{1.6}} \\ L_1(E) &= \frac{L_{\text{low}}L_{\text{high}}}{L_{\text{low}} + L_{\text{high}}} \end{aligned} \quad (2.50)$$

が提案されている . なお, E の単位は keV/u である .

2.5.4 ブロッホ補正項

標的原子の電子よりも入射荷電粒子の速度が大きい場合の阻止能について, ブロッホはボルン近似を用いずに阻止能を計算した [37] . ブロッホの得た結果をベーテの阻止能公式においても得るためには, ベーテの阻止能公式における $L_0(\beta)$ に対して, $Z_1^2 L_2(\beta)$ という補正項を加えること必要がある . ここで $Z_1^2 L_2(\beta)$ は,

$$Z_1^2 L(\beta) = -y^2 \sum_{n=1}^{\infty} [n(n^2 + y^2)] - 1, \quad y = \frac{Z_1 \alpha}{\beta} \quad (2.51)$$

であり, $\alpha \equiv 1/137.036$ は微細構造定数である . y が小さい領域では, 次の式で良く近似される [12, 38] .

$$Z_1^2 L(\beta) = -y^2 [1.20206 - y^2 (1.042 - 0.8549y^2 + 0.343y^4)] \quad (2.52)$$

$b/x^{1/2}$	F	$b/x^{1/2}$	F
0.02	21.5	1.8	0.5
0.03	20	1.9	0.43
0.04	18	2	0.42
0.05	15.6	2.1	0.3
0.06	15	2.4	0.2
0.07	14	3	0.13
0.08	13.5	3.08	0.1
0.09	13	3.1	0.09
0.1	12.2	3.3	0.08
0.2	9.25	3.5	0.07
0.3	7	3.8	0.06
0.4	6	4	0.051
0.5	4.5	4.1	0.04
0.6	3.5	4.8	0.03
0.7	3	5	0.024
0.8	2.5	5.1	0.02
0.9	2	6	0.013
1	1.7	6.5	0.01
1.2	1.2	7	0.009
1.3	1	7.1	0.008
1.4	0.86	8	0.006
1.5	0.7	9	0.0032
1.6	0.61	10	0.0025
1.7	0.52		

表 2.2 Barkas 項計算用の $F(b/x^{1/2})$ の数値表．数値については GEANT4 のコードから引用した [32, 33] ．

y が大きくなっていく極限では,

$$Z_1^2 L(\beta) = -0.577 - \ln y \quad (2.53)$$

となり, Bohr の古典的な阻止能公式の値に近づくようになる [39] .

2.6 Bragg 加法則

さて, ここまでの阻止能に関する議論では標的物質は原子番号 Z_2 の単体を仮定して議論してきた. しかし, 本研究で主に取り扱う水 (H_2O) の様に, 実際の標的物質は化合物であったり, 混合物であったりする場合が多い. この節ではその様な化合物, 混合物を標的とした場合の阻止能について考える.

Bethe-Bloch の阻止能公式において, (2.37) 式で表される阻止能 S_e を標的原子の数密度 N で割った物を阻止断面積と呼ぶ. 炭素, 水素, 酸素で構成される有機化合物 $\text{C}_x\text{H}_y\text{O}_z$ を考えたとき, 化合物全体の阻止断面積 σ は 2.1 節で述べたようにそれぞれの原子の阻止断面積の和となるので,

$$\sigma = x\sigma_{\text{C}} + y\sigma_{\text{H}} + z\sigma_{\text{O}} \quad (2.54)$$

となる. ここで, $\sigma_{\text{C}}, \sigma_{\text{H}}, \sigma_{\text{O}}$ はそれぞれの原子の阻止断面積である. この様に, 化合物, 混合物の阻止断面積が構成原子の阻止断面積の和となる法則を Bragg の加法則と呼ぶ. しかし, 実際の化合物, 混合物の阻止能を求める際に構成原子一つ一つについて阻止断面積を求めてから和をとるのは, 実用上, 非常に不便である. そこで, 計算を楽にするために, 化合物全体を実効原子番号 Z_{eff} の原子が n 個集まった集団として見立て, 原子番号 Z_{eff} の原子 1 個当たりの阻止断面積 σ_{eff} ,

$$\sigma = n\sigma_{\text{eff}} = \frac{4\pi a_0^2 m_e c^2 Z_1^2}{\beta^2} Z_{\text{eff}} n L_{\text{eff}}(\beta) \quad (2.55)$$

を考える. ここで, 分子を構成する原子の数である n は 1 分子に含まれる原子数の和 $n = x + y + z$ である. (2.54) 式を書き下すと,

$$\sigma = \frac{\kappa Z_1^2}{\beta^2} Z_{\text{eff}} n L_{\text{eff}}(\beta) = x \frac{\kappa Z_1^2}{\beta^2} Z_{\text{C}} L_{\text{C}}(\beta) + y \frac{\kappa Z_1^2}{\beta^2} Z_{\text{H}} L_{\text{H}}(\beta) + z \frac{\kappa Z_1^2}{\beta^2} Z_{\text{O}} L_{\text{O}}(\beta) \quad (2.56)$$

となる． Z_C, Z_H, Z_O は炭素，水素，酸素の原子番号を表す． κ は定数項であり， $\kappa = 4\pi a_0^2 m_e c^2$ である．ここで，実効原子番号を，

$$Z_{\text{eff}} = \frac{xZ_C + yZ_H + zZ_O}{n} \quad (2.57)$$

の様に構成原子の原子番号の平均と定義すると，Stopping number の項については，

$$L_{\text{eff}}(\beta) = \frac{xZ_C L_C(\beta) + yZ_H L_H(\beta) + zZ_O L_O(\beta)}{nZ_{\text{eff}}} \quad (2.58)$$

で表されることになる．

前節で述べたように，Stopping number 内については，平均励起エネルギーや殻補正項など様々な項が含まれる．全ての項について，Bragg 則の関係を確認するのは煩雑すぎるので，特に重要な実効平均励起エネルギー I_{eff} と実効殻補正項 C_{eff} に，そして取り扱いが複雑な Barkas 項について説明する．まず，平均励起エネルギーについては (2.58), (2.39) 式より，

$$nZ_{\text{eff}} \ln I_{\text{eff}} = xZ_C \ln I_C + yZ_H \ln I_H + zZ_O \ln I_O \quad (2.59)$$

であるから，

$$\ln I_{\text{eff}} = \frac{xZ_C \ln I_C + yZ_H \ln I_H + zZ_O \ln I_O}{nZ_{\text{eff}}} \quad (2.60)$$

と表すことができる．殻補正項についても同様に，

$$nZ_{\text{eff}} \frac{C_{\text{eff}}}{Z_{\text{eff}}} = xZ_C \frac{C_C}{Z_C} + yZ_H \frac{C_H}{Z_H} + zZ_O \frac{C_O}{Z_O} \quad (2.61)$$

となり，

$$C_{\text{eff}} = \frac{xZ_C + yZ_H + zZ_O}{n} \quad (2.62)$$

と求めることができる．

最後に，Barkas 補正項について考える．(2.47) 式で示したように，Ashley らの求めた Barkas 補正項には内部に複雑に Z_2 が入るため，上で述べたような単純な加法則を用いる

ことはできない．Ashley らは化合物の阻止能について計算し，次の様な 3 種類の有効電荷を考えることで，Barkas 効果に Bragg 則を適用した．

$$Z_c^{1/2} = \frac{\sum_i n_i Z_{2,i}^{3/2}}{\sum_i n_i Z_{2,i}} \quad (2.63)$$

$$\ln \bar{Z}_c = \frac{\sum_i n_i Z_{2,i} \ln Z_{2,i}}{\sum_i n_i Z_{2,i}} \quad (2.64)$$

$$\ln \bar{Z}'_c = \frac{\sum_i n_i Z_{2,i}^{3/2} \ln Z_{2,i}}{\sum_i n_i Z_{2,i}^{3/2}} \quad (2.65)$$

これらの有効電荷を用いると，Barkas 効果を考えない場合の阻止能 $S_0(x_c)$ に対する，考えた場合の阻止能 $S(x_c)$ の比は，

$$\frac{S(x_c)}{S_0(x_c)} = 1 + \frac{Z_1 L_1(x_c)}{L_0(x_c)} = 1 + \frac{Z_1}{\bar{Z}_c^{1/2}} \frac{\kappa(b, x_c)}{x_c} f(Z_c, x_c) \quad (2.66)$$

で表される．ここで， $x_c = \beta^2 / \bar{Z}_c \alpha^2$ である．上の式において，第 2 項が Primary Stopping Number(L_0) に対する Barkas 補正項 ($Z_1 L_1$) の比に相当することが分かる． $\kappa(b, x_c)$ は，

$$\kappa(b, x_c) = \frac{F(b/x_c^{1/2})}{x_c^{1/2} L_0(x_c)} \quad (2.67)$$

であり，これを代入すると，

$$\frac{S(x_c)}{S_0(x_c)} = 1 + \frac{Z_1}{\bar{Z}_c^{1/2}} \frac{F(b/x_c^{1/2})}{x_c^{3/2} L_0(x_c)} f(Z_c, x_c) \quad (2.68)$$

となる．最後に残った $f(Z_c)$ は Bragg 則を適用することによる補正項であり，

$$f(Z_c, x_c) = \frac{Z_c^{1/2}}{\bar{Z}_c^{1/2}} \left(1 + \frac{\ln(Z_c / \bar{Z}'_c)}{L_0(x_c)} \right) \quad (2.69)$$

である．計算に必要な $L_0(x_c)$ は適当に平均励起エネルギー I を選択して，計算してもよいが，Ashley は次の式でよく近似できることを示している [31]．

$$L_0(x_c) = \ln \left(\frac{x_c}{q} \right) \quad (2.70)$$

パラメーター q は $x_c > 1$ の領域では $q = 0.18$ を使用することを Ashley は提案している．本研究が対象とするエネルギー領域において， $f(Z_c, x_c)$ は値としては $0.95 \sim 1.01$ 程度あり，ほとんど変化しないが， 300 keV/u 程度のエネルギー領域になると，急激に小さくなる．なお，Ashley の提案した $L_0(x_c)$ の値は， I を選択して $L_0(x_c)$ を計算した場合とおおむね良く一致する．

最終的に，(2.47) 式の γ をかけて， $L_1(x_c)$ は，

$$L_1(x_c) = \frac{\gamma F(b/x_c^{1/2})}{Z_c^{-1/2} x_c^{3/2}} f(Z_c, x_c) \quad (2.71)$$

となる．なお，Ashley の手法は手続きが煩雑であり，すぐに比較を行いたい場合には不便である．最も簡単な計算方法としては Ziegler の提案している内部に Z_2 を含まない Barkas 補正項の計算法，(2.49) 式を使用することである．

ここまで述べてきた Bragg 加法則は標的内の原子の電子状態が単体として存在する場合と変わらないことを前提としている．従って，化合物標的の場合，化学結合の状態によって Bragg 則からずれることが考えられる．実際に，Bragg 加法則は高エネルギー領域での相互作用では良く成立することが知られているが，阻止能が極大となる数百 keV/u のエネルギー領域では外れることが確認されている．特に，P. Bauer らは $10 \sim 1000 \text{ keV}$ の陽子に対する水 (H_2O) や二酸化ケイ素 (SiO_2)，酸素 (O_2) などの阻止断面積を測定し，酸素原子が 1 個当たりの阻止断面積を比較した．その結果，標的によって，酸素原子 1 個当たりの阻止断面積が最大で 2 倍近く違うことを確認し，その原因が化合物中の酸素原子の電子状態が，単体として存在している時の電子状態から大きく変化することにあると報告している．このことから，標的原子の電子状態が単体の時の電子状態から大きく変化していない場合は Bragg 加法則が適用できるが，水の様に分子軌道が重要となる場合は適用できなくなる．表 2.3 に水素，酸素の平均励起エネルギーと，(2.60) 式を用いて求めた水 (H_2O) の平均励起エネルギーを示す．Bragg 則によって，求めた水の平均励起エネルギーは 79.8 eV であるが，実際に ICRU49[12] で推奨されている数値は液体の水で 75 eV ，蒸気の水で 71.6 eV となっている．

Material	Atomic Number	Mean Excitation Energy
Hydrogen	1.0	19.2 eV
Oxygen	8.0	95.0 eV
Water(Bragg rule)	3.33	79.8 eV
Water(Liquid)		75.0
Water(Vapor)		71.6 eV

表 2.3 各物質の原子番号と平均励起エネルギー (ICRU 49[12] より引用)

2.7 弾性散乱断面積

標的内での粒子の散乱は標的原子核と入射粒子のクーロン弾性散乱によって起こる．そこで、この節では、標的内で入射粒子が受ける弾性散乱断面積について解説する．標的原子の中心力ポテンシャルによる入射粒子の散乱は、重心系において換算質量 μ の質点がある与えられたポテンシャル $V(r)$ によって散乱される問題に置き換えることができる．ここではこの散乱問題を量子力学を用いて考えることで微分断面積を求める．

量子力学では、粒子を波動として考える．散乱問題は入射してきた粒子を表す平面波がポテンシャルによって散乱される問題へと置き換えられる．このポテンシャルによって散乱された波はポテンシャルの中心を発した球面波と考えることができる．ここで、系のエネルギーは時間に依らず一定であるので、ポテンシャルの中心から十分に離れた位置で観測される散乱波を表す式を

$$\psi(r) = f(\theta) \frac{e^{ik_{CM}r}}{r} \quad (2.72)$$

と書くことにする．このように散乱を考える問題では一般に散乱波の振幅がポテンシャルのために $f(\theta)$ によって変調をうけると考え、この $f(\theta)$ を散乱振幅と呼ぶ．なお、ここでは散乱は ϕ 方向には等方的であると考え、 ϕ は省略している．

散乱断面積の考え方を波の散乱に当てはめれば、単位面積あたりの入射波の強度に対す

る全方向に積分した散乱波の強度の比を全散乱断面積 σ_{tot} とおくことができる．このことから，

$$\sigma_{\text{tot}} = \int_0^{4\pi} |f(\theta)|^2 \frac{1}{r^2} r^2 d\Omega = \int_0^{4\pi} |f(\theta)|^2 d\Omega_{\text{CM}} \quad (2.73)$$

となる．この散乱振幅の二乗が微分断面積

$$\sigma'_{\text{CM}}(\theta) = |f(\theta)|^2 \quad (2.74)$$

を与える．具体的に散乱振幅を求めるには以下のような中心力ポテンシャルでのシュレディンガー方程式を解かなくてはならない．

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla^2 + V(r) \right] \psi(r) = \frac{\hbar^2 k_{\text{CM}}^2}{2\mu} \psi(r) \quad (2.75)$$

なお， k_{CM} は入射波の波数で， E_{CM} は重心系での粒子の運動エネルギーであり，

$$E_{\text{CM}} = \frac{\hbar^2 k_{\text{CM}}^2}{2\mu} \quad E_{\text{CM}} = \frac{\mu}{M_1} E \quad (2.76)$$

となる．

この波動方程式の厳密解は部分波に展開することで得られるが，ここでは第一 Born 近似の下で微分断面積を求める．座標系は直交座標系のもとで考える． r が大きいところでの波動方程式の解は，入射波と散乱波の重ね合わせで表され，

$$\phi \sim \exp(ik_{\text{CM}}z) + \frac{f(\theta)}{r} \exp(ik_{\text{CM}}r) \quad (2.77)$$

となる．今，簡単のため

$$U(r) = \frac{2m}{\hbar^2} V(r) \quad (2.78)$$

とすると，式 (2.75) は

$$\nabla^2 \psi + \{k_{\text{CM}}^2 - U(r)\} \psi = 0 \quad (2.79)$$

と整理することができる．ここで， $U(r)$ は k_{CM}^2 に比べて小さい摂動項と考えられるので，解は式

$$\psi = \exp(ik_{\text{CM}}z) - \frac{1}{4\pi} \int \frac{\exp\{ik_{\text{CM}}|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|\}}{r - r'} U(r') \psi(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \quad (2.80)$$

を満たすことが分かる．ここで r は観測者の位置ベクトル， r' はポテンシャルが存在する領域内の任意の点の位置ベクトルで，積はポテンシャルが存在する全領域にわたって行う． r は r' に比べて十分に遠いので，

$$|r - r'| \sim r - e_r \cdot r' \quad (2.81)$$

とおける．なお， e_r は大きさが 1 で方向が r 方向の単位ベクトルである．よって，式 (2.80) は

$$\psi \sim \exp(ik_{\text{CM}}z) - \frac{\exp(ik_{\text{CM}}r)}{r} \frac{1}{4\pi} \int \exp(-ik_{\text{CM}}e_r \cdot r') U(r') \psi(r') dr' \quad (2.82)$$

となる．式 (2.77) と比較して散乱振幅は式 (2.82) の積分に $-1/4\pi$ をかけたものとなることが分かる．式 (2.82) はポテンシャルの存在する各所で散乱された波の観測者の位置における重ね合わせが散乱波の散乱振幅を与えることを示している．

$\psi(r')$ はポテンシャル内での散乱波であるが，ここでは波が強く曲げられることは無く，点 r' における入射波 $\exp(ik_{\text{CM}}z')$ と等しいと仮定する．これを式 (2.82) に代入すると，散乱振幅 $f(\theta)$ は

$$f(\theta) = -\frac{1}{4\pi} \int \exp\{ik_{\text{CM}}(e_0 - e_r) \cdot r'\} U(r') dr' \quad (2.83)$$

となる． e_0 は入射波の入射方向を示す単位ベクトルで， $z' = r' \cdot e_0$ である．この積分を計算するため，ベクトル $e_0 - e_r$ 方向を極軸とし，それと r' が作る角を α とする極座標系 (r', α, β) に変換する．ここで， $k_{\text{CM}}|e_0 - e_r|$ は

$$k_{\text{CM}}|e_0 - e_r| = |k_0 - k_r| \quad (2.84)$$

とかける． $K = k_0 - k_r$ とすると， K の大きさは余弦則より，

$$\begin{aligned} K^2 &= k_0^2 + k_r^2 - 2k_0 \cdot k_r \cos \theta \\ &= 2k_{\text{CM}}^2 (1 - \cos^2 \theta) \quad (\because |k_0| = |k_r| = k_{\text{CM}}) \\ &= 4k_{\text{CM}}^2 \sin^2 \frac{\theta}{2} \end{aligned}$$

$$\therefore |\mathbf{K}| = 2k_{\text{CM}} \sin \frac{\theta}{2} \quad (2.85)$$

となり，式 (2.83) は

$$f(\theta) = \frac{1}{4\pi} \int \exp \{i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}'\} U(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \quad (2.86)$$

$$= -\frac{1}{4\pi} \int d\beta \int \sin \alpha d\alpha \int \exp(iKr' \cos \alpha) U(r') r'^2 dr' \quad (2.87)$$

となる． α, β の積分区間がそれぞれ $[0, \pi], [0, 2\pi]$ であることに注意して積分すると，式 (2.87) から

$$\begin{aligned} f(\theta) &= - \int \frac{\sin Kr'}{Kr'} U(r') r'^2 dr' \\ &= -\frac{2\mu}{\hbar^2} \int \frac{\sin Kr'}{Kr'} V(r') r'^2 dr' \end{aligned} \quad (2.88)$$

という公式が得られる．これがボルン近似による散乱振幅で，ポテンシャル $V(r)$ が与えられれば散乱振幅および微分断面積が計算できることになる．

2.7.1 遮蔽型ポテンシャル

前節であつかった中心力ポテンシャル $V(r)$ は標的原子によるイオンの散乱では原子間ポテンシャルがこれにあたる． $V(r)$ に遮蔽のないクーロンポテンシャル

$$V_{\text{Coul}}(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \quad (2.89)$$

を導入したとすると，この積分は発散してしまい，計算することができない．そのため，この積分を行うには，クーロン遮蔽を考慮した遮蔽型ポテンシャルを用いなくてはならない．

今，次のようなパラメーター A_i, B_i で表される遮蔽型ポテンシャル $V_{\text{Sc}}(r)$ を導入する．

$$V_{\text{Sc}}(r) = \sum \frac{A_i \exp(-B_i r)}{r} \quad (2.90)$$

式 (2.88) に $V_{\text{Sc}}(r)$ を代入すると, この時の散乱振幅 $f_{\text{Sc}}(\theta)$ は

$$\begin{aligned} f_{\text{Sc}}(\theta, \Phi) &= -\frac{2\mu}{\hbar^2} \int \frac{\sin Kr'}{Kr'} \sum \frac{A_i \exp(-B_i r')}{r'} r'^2 dr' \\ &= -\frac{2\mu}{K\hbar^2} \sum A_i \int \exp(-B_i r') \sin Kr' dr' \\ &= -\frac{2\mu}{\hbar^2} \sum \frac{A_i}{K^2 + B_i^2} \end{aligned} \quad (2.91)$$

よって, 微分断面積の値は

$$\sigma'_{\text{CM,Sc}} = |f(\theta)|^2 = \left(\frac{2\mu}{\hbar^2} \sum \frac{A_i}{K^2 + B_i^2} \right)^2 = \frac{4\mu^2}{\hbar^4} \left(\sum \frac{A_i}{4k_{\text{CM}}^2 \sin^2(\theta/2) + B_i^2} \right)^2 \quad (2.92)$$

となり, 式 (2.76) より, 最終的に

$$\sigma'_{\text{CM,Sc}} = \frac{4\mu^2}{\hbar^4} \left(\sum \frac{A_i}{\frac{8\mu E_{\text{CM}}}{\hbar^2} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) + B_i^2} \right)^2 \quad (2.93)$$

として求まる. A_i, B_i は遮蔽ポテンシャルによって違い, それぞれのポテンシャルの遮蔽長から求められる. 表 2.4 に各ポテンシャルのパラメーターをまとめた. なお, 表において,

$$V_{\text{I}} = Z_{\text{P}} Z_{\text{T}} e^2 \quad (2.94)$$

$$a_{\text{I}} = \frac{0.8854a_0}{\left(Z_{\text{P}}^{1/2} + Z_{\text{T}}^{1/2}\right)^{2/3}} \quad \text{or} \quad \frac{0.8854a_0}{\left(Z_{\text{P}}^{2/3} + Z_{\text{T}}^{2/3}\right)^{1/2}} \quad (2.95)$$

$$a_{\text{U}} = \frac{0.8854a_0}{(Z_{\text{P}}^{0.23} + Z_{\text{T}}^{0.23})} \quad (2.96)$$

である. 3 種類の遮蔽長はそれぞれ Firsov, Lindhard, Ziegler らによって提案されたものである.

ポテンシャル名		$i = 1$	$i = 2$	$i = 3$	$i = 4$
Coulomb Potential (遮蔽なし)	A_i	V_I	-	-	-
	B_i	0	-	-	-
Bohr Potential	A_i	V_I	-	-	-
	B_i	$1/a_I$	-	-	-
Moliere Potential	A_i	$0.35V_I$	$0.55V_I$	$0.10V_I$	-
	B_i	$0.3/a_I$	$1.2/a_I$	$6.0/a_I$	-
Lenz - Jensen Potential	A_i	$0.7466V_I$	$0.2433V_I$	$0.01018V_I$	-
	B_i	$1.038/a_I$	$0.3876/a_I$	$0.206/a_I$	-
Universal Potential	A_i	$0.1818V_I$	$0.5099V_I$	$0.2802V_I$	$0.02817V_I$
	B_i	$3.2/a_U$	$0.9423/a_U$	$0.4028/a_U$	$0.2016/a_U$

表 2.4 各ポテンシャルの遮蔽パラメーター . V_I および , a_I, a_U の値については式 (2.94),(2.95),(2.96) を参照 .

第 3 章

実験

本研究では MeV 領域の荷電粒子線が液体物質内で受けるエネルギー損失，散乱過程について知見を得ることを目的としている．そこで，液体標的内で高速荷電粒子線が受けるエネルギー損失，散乱を測定するため，高真空衝突槽内に液体分子線標的を導入し，標的透過後の高速荷電粒子線のエネルギー分布，散乱角度分布を測定する実験を行った．本章では，研究に使用した実験装置および実験環境評価について述べる．

3.1 実験装置

3.1.1 ビームライン

実験は京都大学工学研究科附属量子理工学教育研究センター (Quantum Science and Engineering Center : QSEC) 設置の 2.5 MV Van de Graaf 型重イオン加速器で行った．実験で使用したイオン種は H^+ ， He^{2+} であり，加速器で加速したイオンは 90° 電磁石により質量，エネルギー選別された後，ビームラインに導入される．

ビームラインのセットアップ概念図を図 3.1 に示す．ビームラインでは加速したイオンを最上流に設置した 2D-スリットでコリメートし，縦横 1×1 mm 程度にビームを粗く整形した．さらに，そこから下流に 2 m の位置に間隔 900 mm で設置した $1 \mu\text{m}$ 単位で可動な 2 台の高精度 2D-Slit でスリット幅 $50 \mu\text{m}$ でコリメートして入射粒子の平行度を確

保し，最後に衝突チェンバー直前に設置した高精度 2D-スリットでエッジ散乱などの成分を取り除いた後，衝突槽に導入し，液体標的に照射した．なお，実験中のビームライン真空度は 1.0×10^{-4} Pa 以下であった．

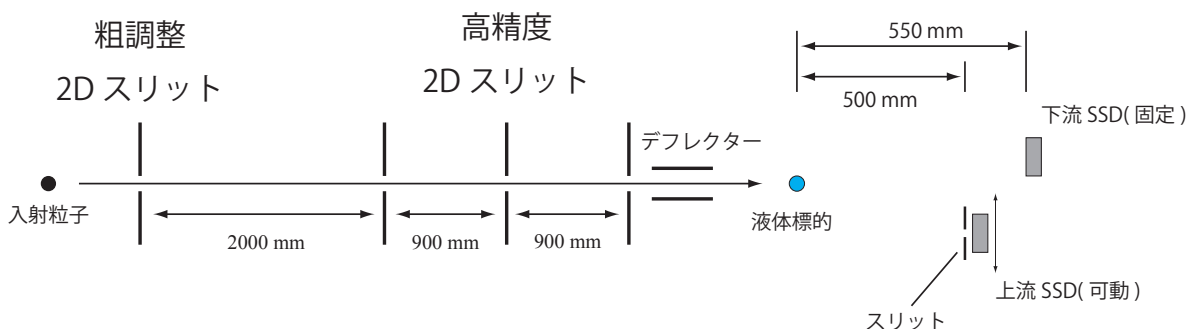


図 3.1 ビームラインセットアップ概略図

3.1.2 衝突槽

実験槽の概略図を図 3.2 に示す．本研究の要である液体分子線については次節で詳しく記すこととして，ここでは概要だけ示す．本研究では高速液体クロマトグラフ用送液ポンプにより標的となる液体を送り出し，直径 20 または 50 μm のノズルから真空中に噴出することで液体分子線を作成した．用意した液体分子線標的にイオンビームを照射することで，液体標的透過後のイオンビームのエネルギー分布，散乱角度分布を測定して，液体標的の内におけるエネルギー損失，散乱過程に関する知見を得ることを試みた．

液体分子線は衝突槽中心の真上から導入し，衝突槽の下部に設置した液体窒素トラップによって，噴出した液体を凝固させることで真空度の悪化を防ぐ仕組みとした．実験中の衝突槽の真空度はおよそ 10^{-2} Pa 以下だった．

3.1.3 検出器

図 3.1 に示したように，標的である液体分子線のさらに下流 500 mm と 550 mm の位置に 2 台の PIPS(Passivated Implanted Planer Silicon Detector) 型の半導体検出器

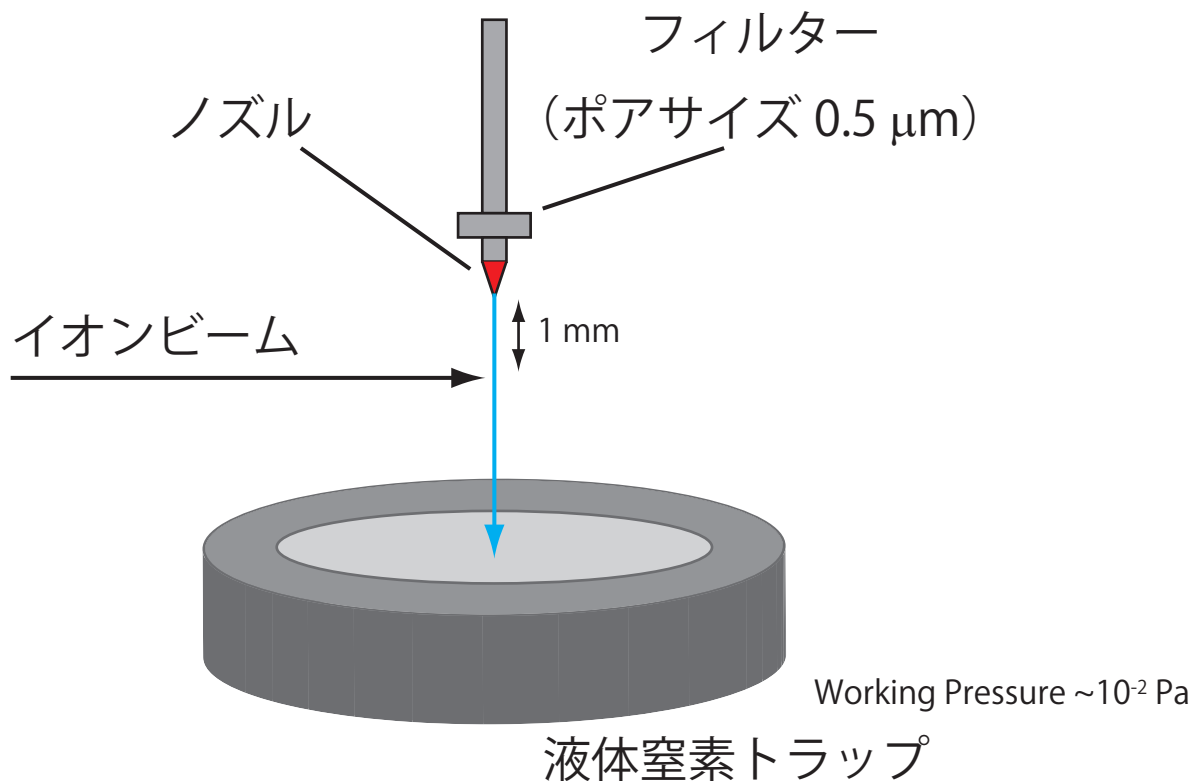


図 3.2 衝突チェンバー実験セットアップ概略図

(Solid State Detector : SSD) を設置した．上流側の SSD をビーム軸に対して垂直に可動できるようにし，標的透過後の荷電粒子のエネルギー測定および散乱角度分布測定に用いた．もう一方の下流側の SSD はビーム電流校正用とした．上流側の SSD の有効面積は 25 mm^2 であり，検出面の全面には図 3.1 に示したように，スリットを取り付けている．上流 SSD の可動範囲はビーム中心軸の位置を 0 として，およそ ± 1.0 インチであり，角度にして $\pm 55 \text{ mrad}$ 程度である．

本研究では，標的透過後の荷電粒子線の散乱角度分布の測定を行っており，測定している散乱角度分布の許容角はこの SSD の検出面の形状で決まる．ここでは，SSD をビーム中心軸からの距離 x の位置に構えた時の測定の許容角について考察する．図 3.3 に液体標的と，上流側 SSD の位置関係の概略図を示す．前述したように，上流側 SSD にはスリットを取り付け，検出面を横 1 mm ，縦 5 mm の形状になるようにしている．上流側 SSD

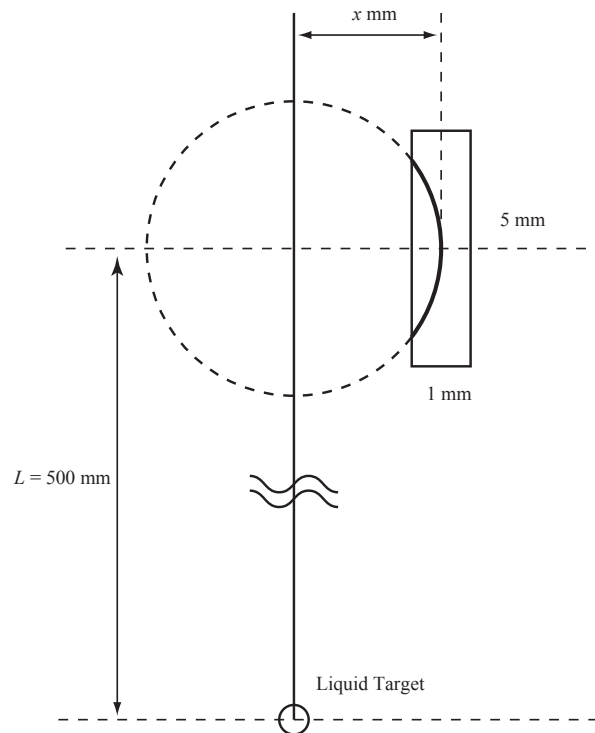


図 3.3 許容角の見積もり概略図

はビーム軸に対して垂直に可動になっており，測定の際にはこの SSD をビーム軸中心に対して垂直に 0.05 インチずつ移動させて，散乱角度分布を測定した．この際，上流 SSD に対して入射する荷電粒子の散乱角度は検出面において，最もビーム軸中心に近い側に相当する小さい角度から，最も遠い側に相当する大きい角度までである一定の幅を持っていることが分かる．さらに角度によって検出効率が異なるため，最も遠い側に相当する角度や，近い側に相当する角度は検出面にほとんど含まれないため，ほとんど意味をなさない．そこで，図 3.3 に示したように，検出器をある位置 x で構えた際の，SSD の検出面に含まれる角度について，検出面に含まれる量（検出効率）を考え，本実験における測定の許容角，および，有効角度を計算によって求めた．典型的な計算結果を図 3.4 に示す．図は中心軸から 0.4 インチの位置で上流 SSD を構えたときに，検出面に含まれる散乱角と各散乱角度に対応する弧の長さを示したグラフである．図 3.3 にあるように，ある散乱角度に相当する円を考えた時，検出面を通過する円弧の長さに検出効率は比例する．そこ

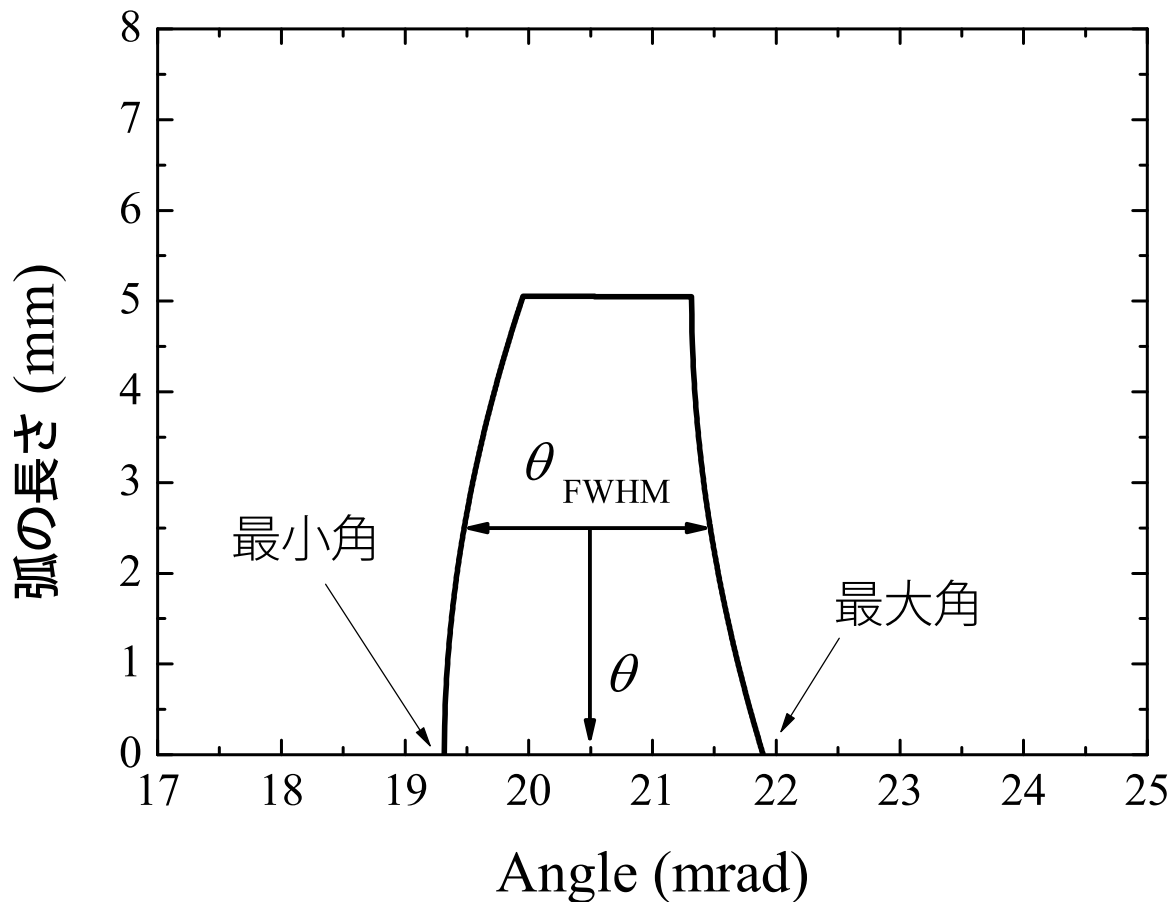


図 3.4 $x = 0.4$ インチの位置における角度誤差の検出効率

で，検出効率＝弧の長さと考えて以下の考察を進める．図より検出効率は 19.5 mrad から始まり，20 mrad 付近で最大を迎えてほぼ一定となった後，21.5 mrad 付近から減少を始め，22 mrad 付近で 0 となることが分かる．この図から上流 SSD の許容角を最大検出効率（最大の弧の長さ）の半値幅を許容角 θ_{FWHM} とした．さらに，この許容角の中心を有効角 θ と定め，散乱角度分布の横軸とした．

最後に測定角度の不確かさを決める．検出器の測定角度を決めるパラメーターは標的から検出器までの距離 L と x で決まる．本研究で測定した角度の範囲は 10 ～ 50 mrad であり，この様に微小な角度では，

$$\theta = \arctan \frac{x}{L} \approx \frac{x}{L} \quad (3.1)$$

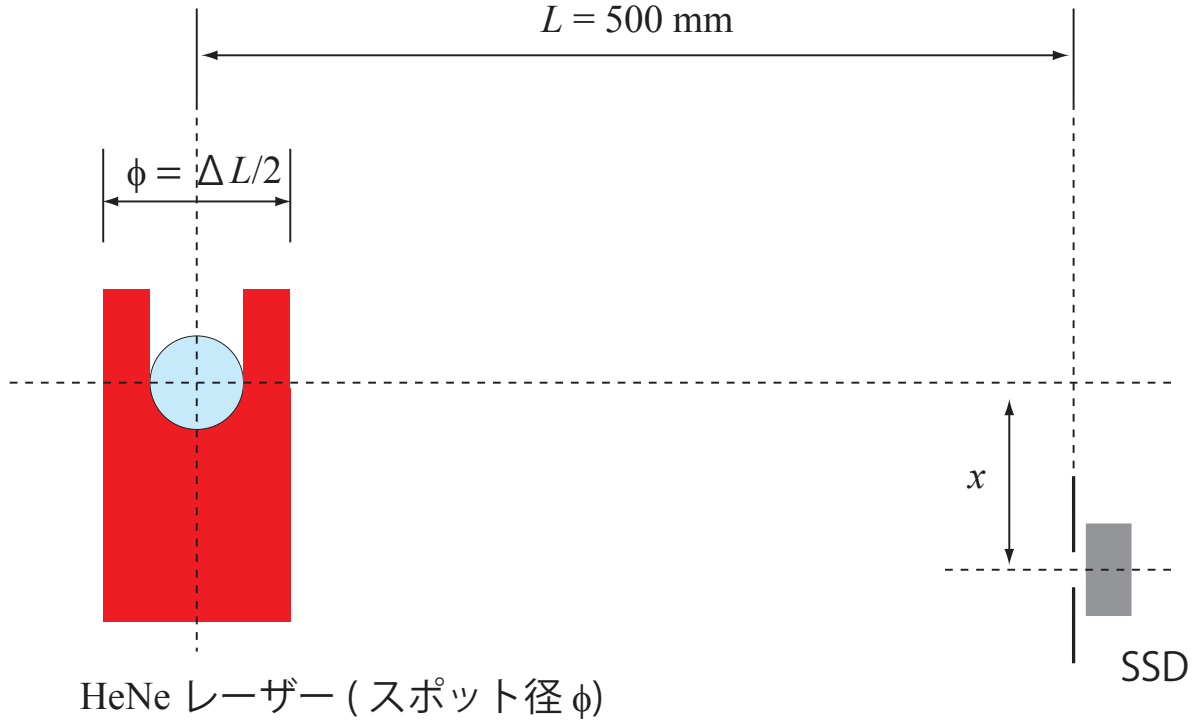


図 3.5 標的の位置決め

として良い．よって，誤差の伝搬を考えると，角度 θ の不確かさ $\Delta\theta$ は以下のように表される．

$$\left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)^2 = \left(\frac{\Delta x}{x}\right)^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)^2 \quad (3.2)$$

ここで， Δx は x の位置決めの不確かさであり， ΔL は距離 L の不確かさである． Δx は検出器を取り付けた直線導入器の位置決め不確かさと，標的の x 方向の位置決め不確かさの和となる．本研究で用いた直線導入器は 0.001 インチ単位で位置を決めることができる．これを検出器の位置決め不確かさとした．次に，標的位置は入射荷電粒子に標的が衝突していることで確認しているので，その不確かさはビーム幅で決まる．標的位置において，入射荷電粒子線のビーム幅は $150 \mu\text{m}$ 程度になっており，標的の位置決め不確かさは $75 \mu\text{m}$ となる．これらの和を x の不確かさとし， $\Delta x = 0.1 \text{ mm}$ とした．続いて， ΔL については，図 3.5 を用いて考える．本研究では，標的を衝突槽中心に設置するために，

ビーム下流に設置したトランジットと、ビーム軸に垂直に導入した HeNe レーザーを用いている。HeNe レーザーに標的があたると、HeNe レーザーによる干渉縞が観測されるので、干渉縞が観測される範囲の中心に標的を設置することで、標的が衝突槽の中心に設置されていることを担保している。従って、 L の不確かさ ΔL を HeNe レーザーのスポット径とした。HeNe レーザーのスポット径は標的位置で 2 mm 程度となっているので、 $\Delta L = 1 \text{ mm}$ とした。以上の $\Delta x, \Delta L$ を用いて角度の不確かさ $\Delta\theta$ を求め、これを散乱角度分布測定 of 散乱角度の不確かさとした。

3.1.4 HeNe レーザーによる回折パターン測定

前小節で述べたように、本研究ではビーム軸に垂直な方向から HeNe レーザーを標的に照射し、標的の反対側に設置したスクリーンで標的によるレーザー光の回折パターンを測定している。この目的の一つは、前述の通り、標的の位置決めであるが、もう一つの大きな目的としてノズルの状態をモニターすることがある。ここではその概略について説明する。図 3.6 に回折パターン測定 of 概略図を示す。図は衝突槽を真上から見下ろした図で、 d は標的の直径、 θ は回折角、 L は標的からスクリーンまでの距離である。ここで図の上側を通るレーザー光と下側を通る光が、ちょうどダブルスリットの関係となり、スクリーン上には回折パターンが観測される。ここで観測される回折パターンの強度は、

$$I = I_0 \frac{\sin^2 \beta}{\beta^2}, \quad \beta = \frac{\pi d \sin \theta}{\lambda} \quad (3.3)$$

となる [40]。ここで λ は HeNe レーザーの波長 628 nm である。この回折パターンは、液体標的が正常なジェットになっている時は図 3.7 の様に一直線上に等間隔に明点が並ぶ。しかし、液体標的に異常が生じている場合は図 3.8 の様に回折パターンが乱れる。このような乱れが生じる理由としては、ノズルのつまりなどによって、ジェットが枝分かれしたり、うねりが生じていたりすることが考えられる。いずれにせよ、このような変化は肉眼では確認できず、HeNe レーザーの回折パターンによって微細な異常の有無を判断することができる。

実験中は常に HeNe レーザーを照射し、ノズルの異常の有無や位置がずれていないこと

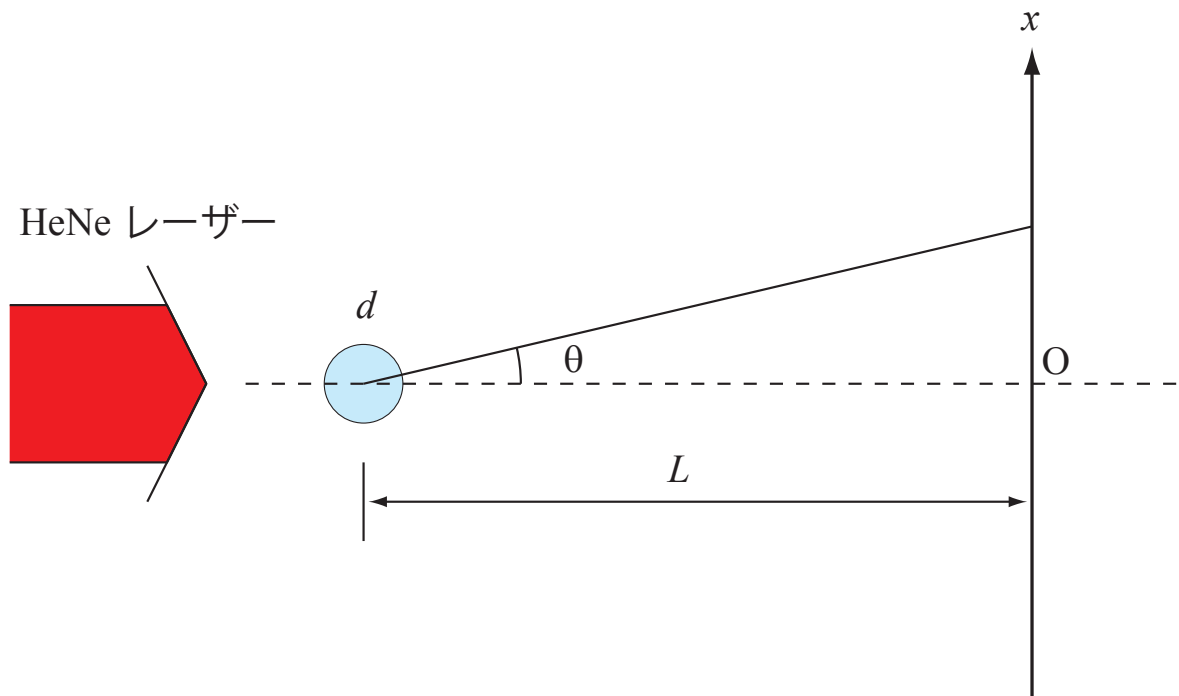


図 3.6 干渉縞測定

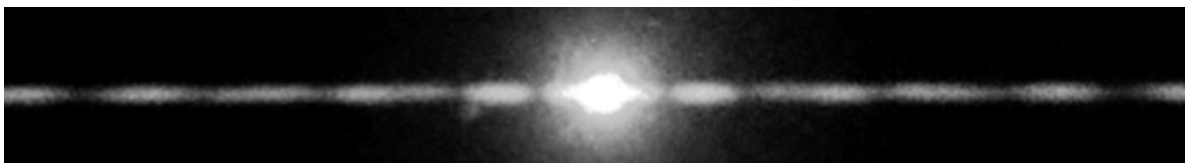


図 3.7 正常時の干渉縞

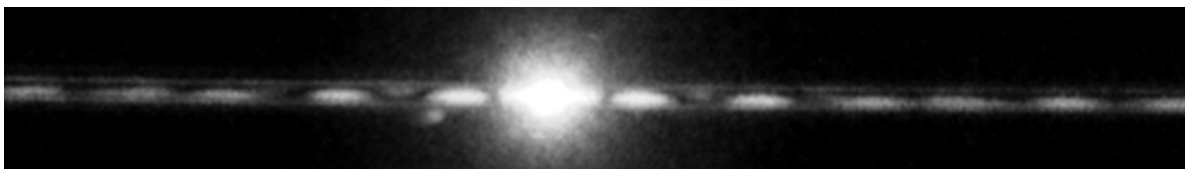


図 3.8 異常時の干渉縞

を常に確認しながら測定を行った。

3.1.5 測定回路

図 3.2 に示すように，ビームライン下流に半導体検出器 SSD を設置し，衝突チェーン通過後の入射イオンのエネルギー分布および散乱角度分布を測定した．測定回路系を図 3.9 に示す．SSD にはキャンベラ社の PIPS 型 SSD(Canberra Inc.) を用いた．SSD からの信号を前置増幅器 (Pre-Amplifier, ORTEC, 142A) で増幅およびインピーダンスマッチングを行い，主増幅器 (Amplifier, ORTEC, 572A) で増幅した後，Multi Channel Analyzer(SEIKO EG&G Co., Ltd., MCA7600) に入力し，波高分析した．また，MCA への入力信号とは別に，主増幅器からの出力信号を SCA(Single Channel Analyzer, ORTEC, 550A) で波高弁別し，カウンタ (Quad Counter/Timer, ORTEC, 974A) で信号数をカウントした．このカウント数と MCA のカウント数が同じになることを確認しながら実験を行った．なお，SSD にかかるバイアス電圧 30 ～ 40 V にし，実験中は常に一定条件のバイアス電圧を加えて実験を行った．

SSD の校正のために， ^{241}Am 線源からの α 線測定を行った．上流に用いた SSD(PD25-12-100AM) で測定を行った場合の一例を図 3.10 に示す．なお，図の横軸は最も大きいピークのエネルギーを 5.468 MeV として，パルスジェネレーター (Precision Pulse Generator, ORTEC, 419) を用いてエネルギー校正している．Am の α 線を測定したところ，5.486 MeV のピークその他，その周辺に存在する 3 つのピークを確認することができた．5.486 MeV のピークに対して，ガウスフィッティングを行い，SSD のエネルギー分解能を評価したところ，SSD の分解能は $\Delta E(\text{FWHM}) = 12.2 \text{ keV}$ であった．測定に用いた SSD の分解能は半値全幅で 12 keV が保証されており，SSD の性能通りの分解能を得ることができていることを確認した．その他，本研究で使用した SSD は全て Am の α 線測定を行い，性能通りの分解能を得ることができているのを確認して実験に用いた．

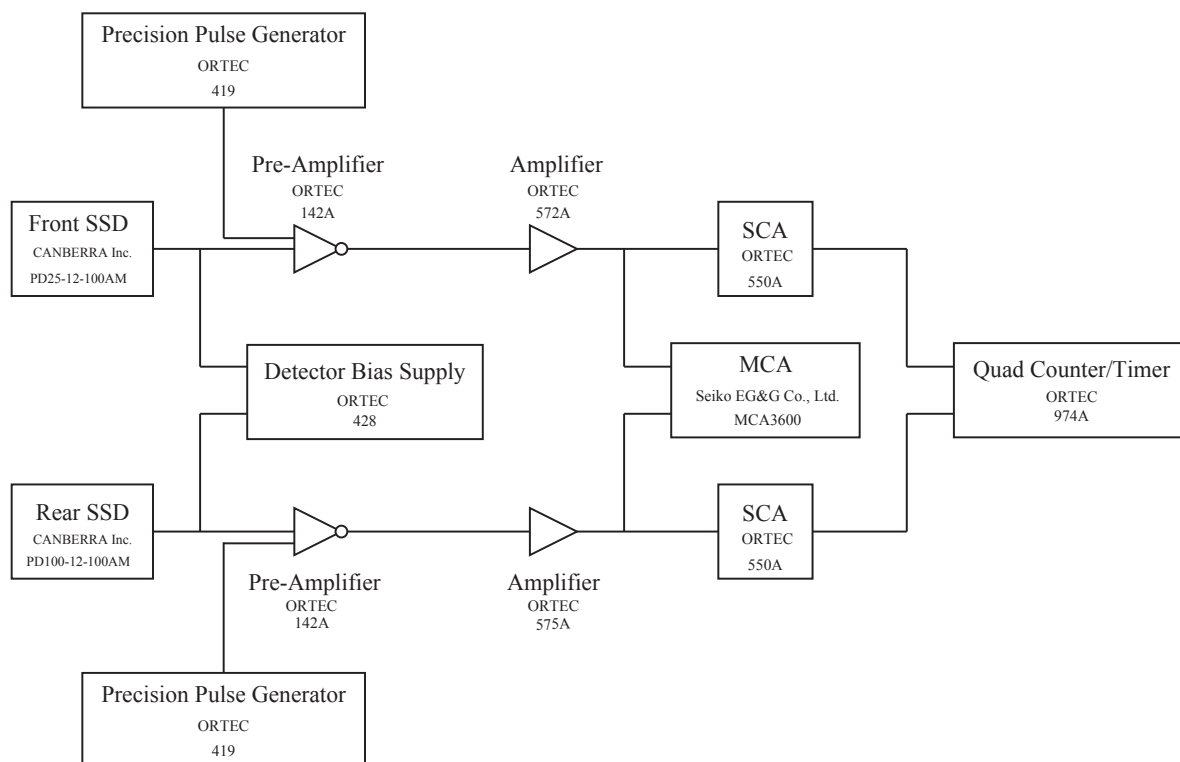


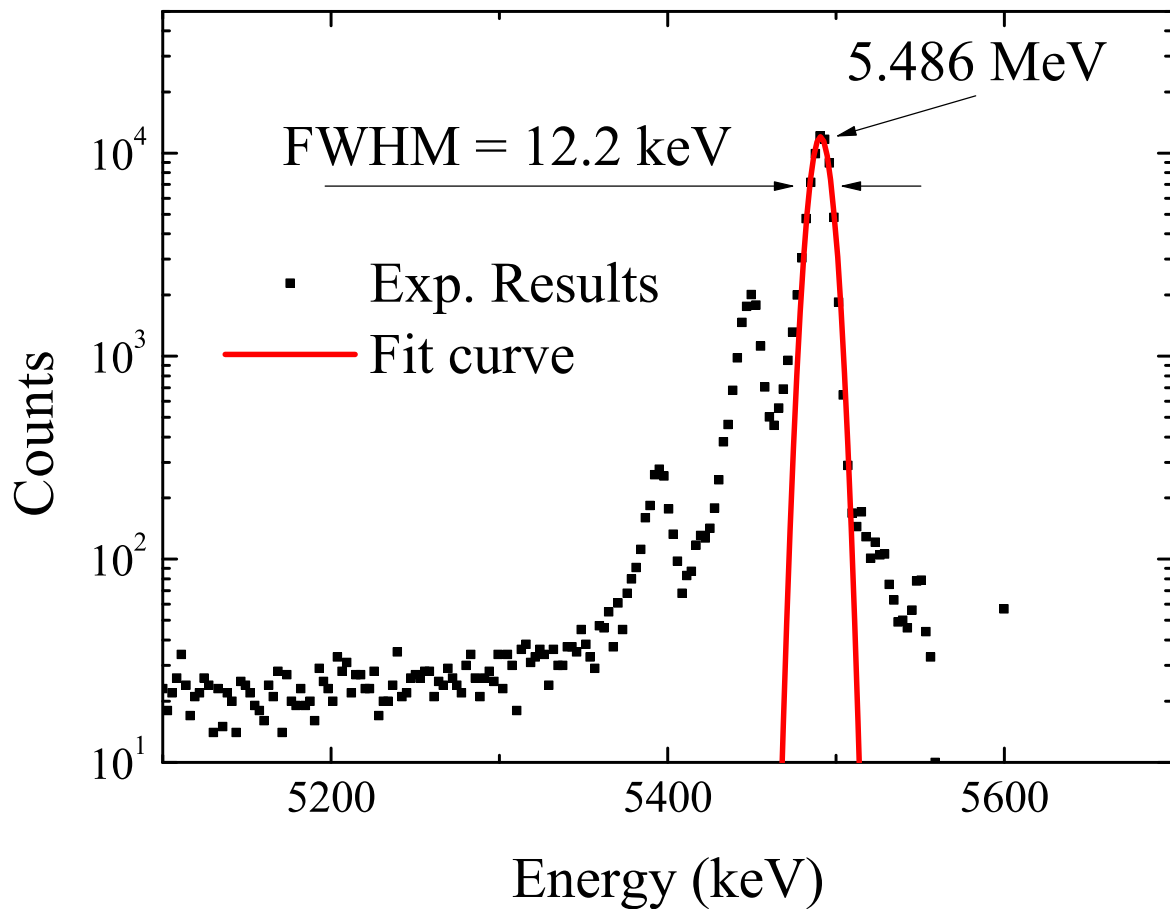
図 3.9 エネルギースペクトル測定セットアップ概略図

3.2 液体分子線

液体に圧力をかけ、極小径 (5 ~ 50 μm 程度) のノズルから液体を液体ジェットとして噴射させたものが液体分子線である。図 3.11 に実際の液体分子線の写真を示す。この節では実験に用いた液体分子線について解説し、実験で用いた液体分子線についての実験環境評価を行う。

3.2.1 液体分子線法の原理

1980 年代後半に至るまで、真空中に液体を露出させた状態で標的として導入する実験はほとんど無かった。一般的によく知られているように、水などの液体を真空中に露出させると、ただちに蒸発してしまう。また、蒸発の際の気化熱によって温度が下がり、液体

図 3.10 ^{241}Am からの α 線のエネルギースペクトル

から固体へと相転移してしまうこともある．従って，液体の物質を安定した標的として真空中に用意することは非常に難しい．また，液体が蒸発することはそのまま真空度の悪化を意味しており，実験に使用することのできる機器が限られてしまう．この様なリスクを克服し，真空中に液体を標的として導入する手法として，Faubel らは真空中に極小径のノズルから液体を液体ジェットとして噴射する液体分子線法を考案し，その特性について詳細な実験を行った [16, 17]．液体分子線は極小径のノズルから液体を噴射するため，表面積が小さく，蒸発に伴う気化熱を少なくすることができる．また，連続流であるため液体が凍りにくいという特性がある．

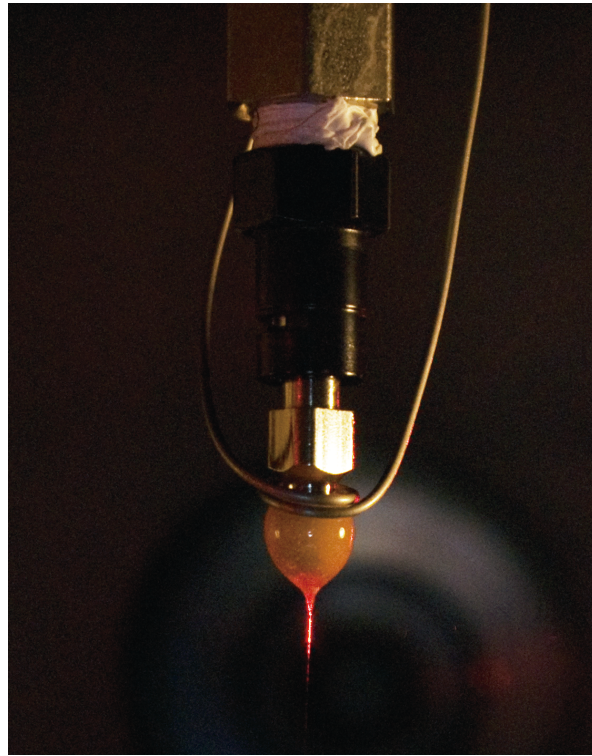


図 3.11 液体分子線：ノズルから噴射した液体の水に横方向から He-Ne レーザーを当てている写真．ノズル先端から糸のように出ている部分が液体の水．レーザー光を散乱して光っているように見える．

3.2.2 液体分子線の温度特性

荷電粒子が物質中で行うエネルギー損失や散乱現象は標的密度の影響を強く受ける．液体物質の密度は温度依存性があるため，真空中に噴射された液体分子線がどのような温度特性を持っているかを見積もることは非常に重要である．そこで，本節ではこの液体分子線の温度特性について考察する．

今，真空中に導入された定常状態の液体分子線について考える．ノズル出口から z [m] 下流の位置での液体の温度を T [K] すると，そこから dz 下流の位置での温度の微小変化

dT は ,

$$dT = -\alpha \frac{\Lambda}{c_P} \quad (3.4)$$

で表される . Λ [$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$] は液体のモル潜熱であり , C_P [$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$] は液体のモル比熱容量である . ここで , α は蒸発した体積と元の体積の比であり ,

$$\alpha = \frac{2\pi r dr dz}{\pi r^2 dz} = 2 \frac{dr}{r} \quad (3.5)$$

となる . なお , dr は液体分子線の半径の微小変化である . ここから ,

$$\frac{dT}{dr} = -\frac{2\Lambda}{rc_P} \quad (3.6)$$

が求められる . 液体分子線の流速を $v_{\text{jet}} = dz/dt$ [m/s] とすると ,

$$\dot{T} = \frac{dT}{dt} = -\frac{2\Lambda}{rc_P} \frac{dr}{dt} = -\frac{2\Lambda}{rc_P} \dot{r} \quad (3.7)$$

となり , 液体分子線の温度 T と位置 z の関係 ,

$$\frac{dT}{dz} = -\frac{2\Lambda}{v_{\text{jet}} c_P} \frac{\dot{r}}{r} \quad (3.8)$$

が導かれる . dt 間に液体分子線の半径が減少した分に対応する液体分子の量は , dt 間に液体分子線表面から蒸発していく液体分子の量と等しいので , 液体の密度を $\rho_{\text{liquid}}(T)$ [$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$] , 気体の密度を $\rho_{\text{vapor}}(T)$ [$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$] とすると ,

$$\dot{r}(T) = \bar{u}(T) \frac{\rho_{\text{vapor}}(T)}{\rho_{\text{liquid}}(T)} \quad (3.9)$$

となる . ここで , $\bar{u}(T)$ [$\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$] は蒸発する分子の平均速度であり , Maxwell 分布則に従うとすると , $\bar{u}(T) = (8RT/\pi M)^{1/2}$ となる . なお , M [$\text{kg} \cdot \text{mol}^{-1}$] は分子のモル質量 , $R = 8.31$ [$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$] は理想気体の状態定数である .

ここで , 液体標的を水とした場合について実際に計算を行った . 本研究では気化熱によって , 水が氷点以下の温度に下がることは容易に予想される . そこで , Murphy らが提案している過冷却状態の水の潜熱 , 蒸気圧に関する経験式を用いて , 計算に必要な水の潜熱 , 蒸気圧を求めた [41] . まず , モル潜熱については ,

$$\Lambda(T) \approx 56579 - 42.212T + \exp 0.1149(281.6 - T); (236 \leq T \leq 273.16 \text{ K}) \quad (3.10)$$

を用い，水の三重点以上の温度 ($T > 273.16$) では， $\Lambda = 45051 \text{ J}\cdot\text{mol}^{-1}$ とした．次に，水の蒸気圧 P_{liq} [Pa] については，

$$\begin{aligned} \ln P_{\text{liq}} \approx & 54.842763 - 6763.22T^{-1} - 4.210 \ln(T) + 0.000367T \\ & + \tanh\{0.00415(T - 218.8)\}(53.878 - 1331.22T^{-1} \\ & - 9.44523 \ln(T) + 0.014025T); \quad (123 \leq T \leq 332 \text{ K}) \end{aligned} \quad (3.11)$$

を用いて求めた．計算に必要な水蒸気の密度については，Van der Waals の状態方程式 [42]，

$$(P + \frac{a}{V^2})(V + b) = RT \quad (3.12)$$

より，1 モルの体積 V を求め，そこから気体の密度 $\rho_{\text{vapor}} = M/V$ を求めた．なお，計算に必要な水のファンデルワールス定数 a, b については， $a = 0.5609 \text{ [Pa m}^6 \cdot \text{mol}^{-2}]$ ， $b = 3.049 \times 10^{-5} \text{ [m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}]$ を用いた [29]．

液体の水の密度については以下の Kell の経験式を用いて求めた [43]．

$$\rho_{\text{liquid}}(T) = \frac{\sum_{n=0}^5 a_n T^n}{1 + bT} \quad (3.13)$$

なお，各係数については表 3.1 に示した．最後に水のモル比熱容量 C_P [$\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$] については，Angell の経験式を用いて求めた [44]．

$$\frac{C_P(T)}{4.1868} = (0.185 + 0.00689T)4.1865 + 10^{0.5009 - 0.66304(\log(\frac{T}{222.65} - 1))} \quad (3.14)$$

なお，元々の Angell の経験式の熱量の単位がカロリーであるため，左辺の C_P を 4.1868 [J] で割っている．以上の式や値を用いて，直径 $20, 50 \text{ }\mu\text{m}$ のノズルから引き出した水の液体分子線について，ノズルからの距離 z [mm] における，液体分子線の温度 T [K]，ノズル半径に対する液体分子線の半径の比 R/R_0 [%]，液体分子線の密度 ρ [g/cm^3] をそれぞれ計算した．なお，各ノズル径での流量は，液体分子線の流速が同じ速度となるように，それぞれ $0.24, 1.5 \text{ mL}/\text{min}$ とし，真空導入時の水の温度 T_0 [$^{\circ}\text{C}$] を 20°C とした．

図 3.12 にノズルからの距離 z [mm] における水の液体分子線の温度変化のグラフを示す．グラフから分かるように，蒸発による気化熱によって液体分子線の温度は急激に低下

Parameter	Value
a_0	0.999836
a_1	1.8224944×10^{-2}
a_2	-7.922210×10^{-6}
a_3	-5.544846×10^{-8}
a_4	1.497562×10^{-10}
a_5	$-3.932952 \times 10^{-13}$
b	1.8159725×10^{-2}

表 3.1 水の密度計算の係数 [43]

していくことが分かる．また，直径と温度低下の関係については直径が細い方が温度低下が激しいことが分かる．これは，径が細ければ細いほど，体積に対する表面積の割合が大きくなるため，その結果，体積に対して気化熱で奪われる熱量の割合が大きくなり，温度低下のペースが速くなるためである．そこで，流量を上げれば分子線の流速が早くなり，同じ位置でも温度がそれほど低下しないと考えられる．そこで， $20\ \mu\text{m}$ の場合において，流量を $0.5\ \text{mL}/\text{min}$ として，計算を行った．その結果についても図 3.12 に緑線で示した．この場合，分子線の流速は最初の条件の 2 倍ほどになっており，劇的に温度低下のペースが小さくなることが分かる．

続いて，ノズルからの距離 $z\ [\text{mm}]$ に対する水の液体分子線の密度変化のグラフを図 3.13 に示す．水の密度は温度変化によって変わるため，ノズルからの距離に対してその変化を示す．先ほどの温度低下の結果からも分かるように，流量が小さい場合， $20\ \mu\text{m}$ のノズルは温度変化が激しくなるため，密度変化も流量が大きい場合に比べると激しくなる．ただし，図から分かるように，この水の密度変化の幅は非常に小さく，流量が小さい $20\ \mu\text{m}$ の計算結果でも， $1\ \text{mm}$ の位置までに， $0.5\ \%$ 以上変化することはない．また，図から分かるように，流量を上げることによって，ノズルの下流 $2\ \text{mm}$ の位置までの標的の密度変化を $0.2\ \%$ の範囲内に納められることが分かる．

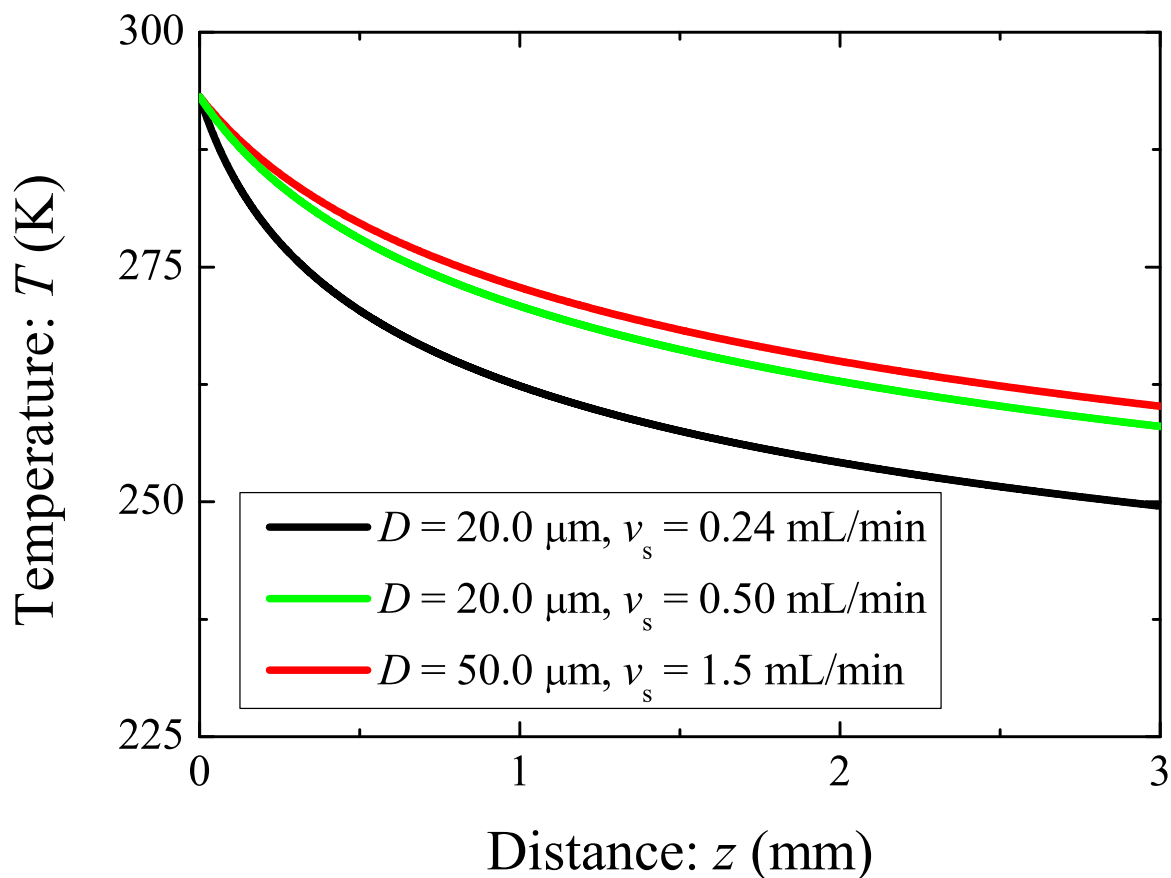


図 3.12 ノズルからの距離 z に対する水の液体分子線の温度変化

最後に図 3.14 にノズルからの距離に対する水の液体分子線の半径 R とノズル半径 R_0 の比 R/R_0 の変化を示す．図から分かるように，ノズルからの距離が離れるに従って，蒸発によって液体分子線の径が減少していく様子が分かる．これについても，温度変化と同様に，ノズル径と流量が小さいほど減少のペースが速くなることが分かる．流量 0.24 mL/min の直径 $20 \mu\text{m}$ のノズルでは，蒸発による液体分子線の径の変化は 1 mm 下流の位置で 3% 程度という計算結果となった．これに対して，流量を 0.5 mL/min にあげることによって減少の幅を 2% 程度に抑えることができる．しかし，今回用いたモデルでは液体分子の蒸発による径の減少しか考慮に入れていないため，必ずしも正確な見積もりとは言えない．実際の液体分子線は流速が非常に早いため，動径方向への拡散が存在する．

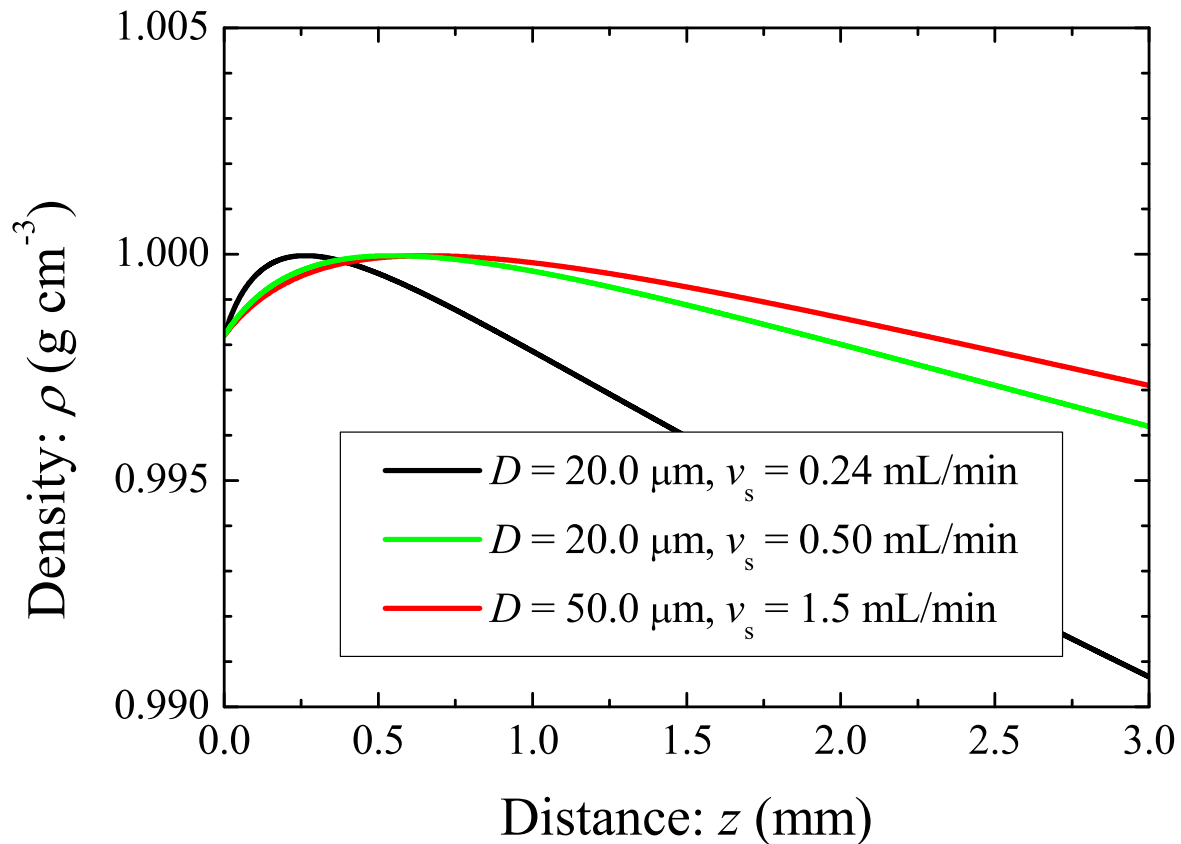


図 3.13 ノズルからの距離 z に対する水の液体分子線の密度変化

具体的には動径方向への拡散でノズルの径である $20\ \mu\text{m}$ より $1\ \mu\text{m}$ 太くなり，径が増えた分，流速が遅くなっているという報告もなされている [20, 45]．

以上のことをまとめると，直径 $20\ \mu\text{m}$ のノズルを使用する場合，流量を $0.5\ \text{mL/min}$ に，直径 $50\ \mu\text{m}$ のノズルの場合は $1.5\ \text{mL/min}$ に設定すると，液体分子線標的の温度，直径，密度の変化をノズルの先端から $1\ \text{mm}$ の位置で上手く抑えることができることが分かった．また，この条件では，ノズルの先端から $1\ \text{mm}$ 下流の位置において，水の液体分子線は $0 \sim 10\ ^\circ\text{C}$ 程度になっており，密度がほぼ一定となっていることが分かる．また，標的径の減少もこの付近では $1 \sim 2\ \%$ 程度であり，非常に小さい．したがって，荷電粒子線を照射する位置としては，ノズルの先端 $1\ \text{mm}$ 付近が最も良いと考え，本研究では荷電粒子線をこの位置に照射した．

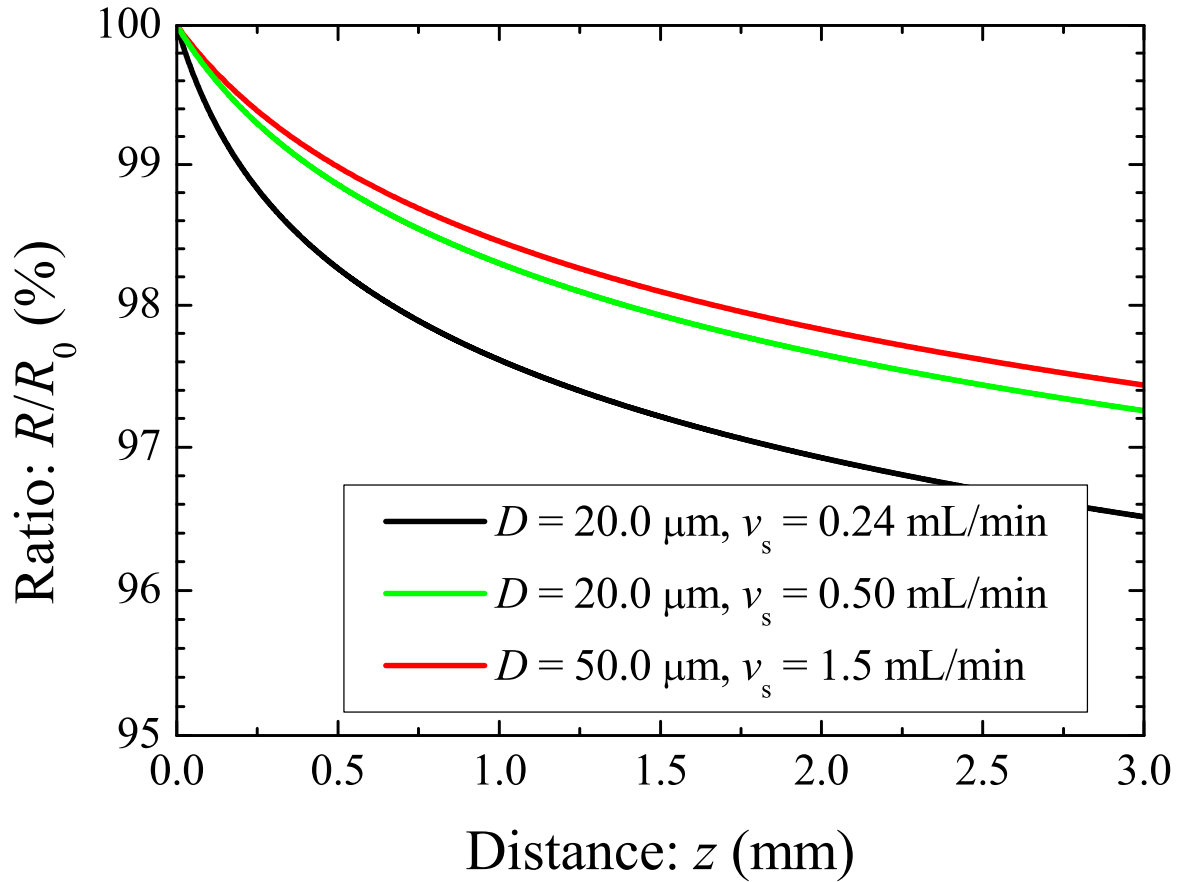


図 3.14 ノズルからの距離に対する水の液体分子線の半径とノズルの半径の比の変化

3.2.3 液体分子線の実験環境評価

真空中に液体分子線を導入した場合，液体の蒸発によって真空度は悪化する．本研究の場合，実験中の衝突槽の真空度は 10^{-2} Pa 程度にまで悪化するが，液体分子線の表面周辺では液体物質の蒸気圧にまで真空度が悪化していることが予想される．真空度が悪化すると，実験に使用する荷電粒子が標的に到達するまでにエネルギーを損失したり，荷電状態が変化したりする．そのため，液体標的に到達するまでにどの程度の数の蒸発した標的分子と衝突するかを見積もる必要がある．そこで，この小節では標的までに荷電粒子線が蒸発した標的分子によって受けるエネルギー損失，荷電変換について考察する．

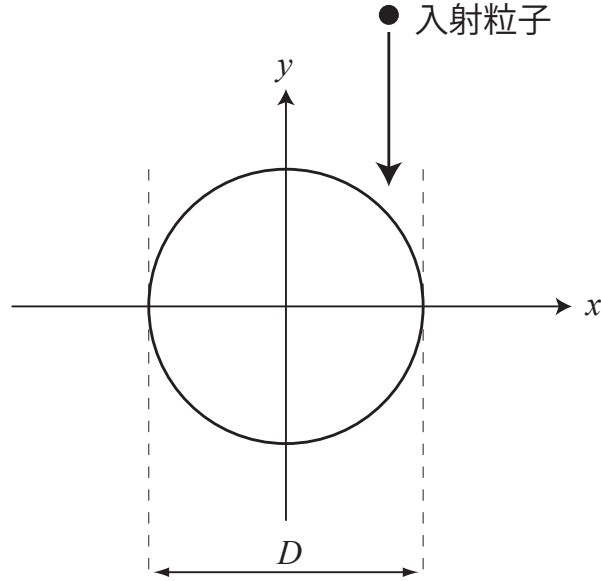


図 3.15 環境評価

今，図 3.15 の様に直径 D の液体分子線の中心を原点に xy 座標を取り， x の位置に荷電粒子が入射する場合を考える．チェンバー内のある位置における微小体積 dV に含まれる粒子数を dN とすると，

$$dN = N_L \frac{P(x, y)}{P_{\text{std}}} dV \quad (3.15)$$

となる．ここで， $P(x, y)$ は位置 (x, y) における真空度であり， P_{std} は標準状態の圧力 1.013×10^5 Pa, N_L は標準状態における 1 cm^3 当たりの分子数 2.6869×10^{19} である． x の位置で液体標的に入射する粒子が標的に衝突するまでに通過する蒸気層の厚さ $N(x) [\text{cm}^{-2}]$ は，

$$N(x) = \frac{N_L}{P_{\text{std}}} \int_{y_{\min}}^{y_{\max}} P(x, y) dy \quad (3.16)$$

となる．ここで，積分範囲の上限を表す y_{\max} には衝突槽の半径 30 cm が入る．下限の y_{\min} には，位置 x での液体標的の表面の y 座標が入り，以下の式で表される．

$$y_{\min} = \sqrt{\left(\frac{D}{2}\right)^2 - x^2} \quad (3.17)$$

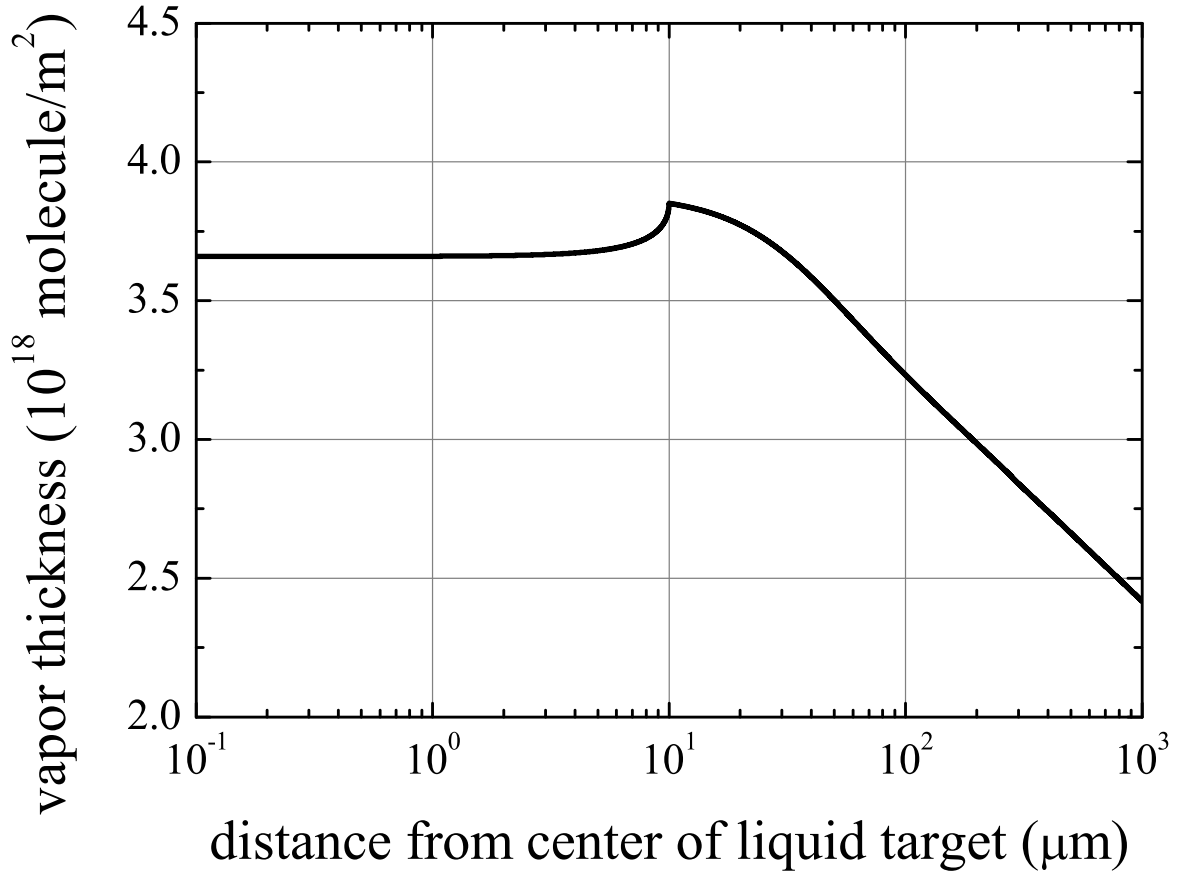


図 3.16 蒸気層厚さの計算結果 ($D = 20.0 \mu\text{m}$, $P_0 = 1.0 \text{ Torr}$, $y_{\text{max}} = 30.0 \text{ cm}$)

なお, $x > D/2$ の時, y_{min} は 0 とした．次に, 真空チェンバー内の真空度 $P(x, y)$ について考える．定常状態において, 液体分子線から蒸発してくる分子の流れを分子流と考え, 動径方向以外への拡散を考えないとする, 蒸発してきた分子の数は液体分子線の中心からの距離に反比例して減少する．そこで, 液体分子線表面の真空度, すなわち液体物質の蒸気圧を P_0 とすると,

$$P(x, y) = \frac{D/2}{\sqrt{x^2 + y^2}} P_0 \quad (3.18)$$

となる．ただし, $P(x, y)$ は衝突槽全体の真空度 P_B より下がることは無い．

以上の式に実際に数値を代入して, 本実験における環境評価を行った．直径 $20 \mu\text{m}$ のノズルから液体の水を液体分子線として引き出した場合, ノズル直下の 1 mm 程度の位

置における液体分子線の表面の蒸気圧は，気化熱による温度低下によって数 Torr 以下になっていると見積もられている．一方で液体標的の直径については， $19.8\ \mu\text{m}$ になっていると見積もられているが，動径方向への拡散により直径 $20.7\ \mu\text{m}$ 程度まで広がるという報告もある [46]．ここでは，典型的な場合として $P_0 = 1.0\ \text{Torr}$ ， $D = 20.0\ \mu\text{m}$ とし，また y_{max} は衝突槽の直径 $30\ \text{cm}$ とした．蒸気層厚さの計算結果を図 3.16 に示す．図より，蒸気層厚さは最大で 4.0×10^{18} 以下である．本研究で主に使用している $1 \sim 2\ \text{MeV}$ の H^+ に対する H_2O の阻止断面積はおよそ $4.0 \times 10^{-19}\ \text{eV}/\text{m}^2$ であるから，入射粒子の液体標的衝突前のエネルギー損失は最大で $1.6\ \text{eV}$ 程度となる．この値は測定誤差よりもはるかに低い値でしか無く，考慮する必要はない．入射粒子が He^{2+} の場合も，阻止断面積は 16 倍程度にしかならないので，やはり考慮する必要はない．さらに，荷電変換断面積については，やはり $1 \sim 2\ \text{MeV}$ の H^+ の荷電変換断面積は $10^{-22}\ \text{m}^2$ であり，入射粒子の荷電変換についても無視して構わない．

第 4 章

GEANT4 によるモンテカルロシミュレーション

本研究では液体標的透過後の荷電粒子のエネルギー分布・散乱角度分布の再現計算に GEANT4 を用いて製作したモンテカルロシミュレーションを使用した．図 4.1 に本研究で用いたモンテカルロシミュレーションの概念図を示す．モンテカルロシミュレーションとは乱数を用いたシミュレーション計算の総称である．図に示したように，本研究では，液体標的内での荷電粒子が行うクーロン散乱の散乱角度および平均自由行程，エネルギー損失など一回一回の散乱について，計算を行い，実験結果を再現した．この章では，GEANT4 の概要と，シミュレーション計算の要であるエネルギー損失・散乱計算について説明する．

4.1 GEANT4

GEANT4 は CERN が開発したモンテカルロシミュレーション製作のためのツールキットである．物理現象の計算，検出器のジオメトリー，計算結果のデータ生成，視覚化など，さまざまなツールで構成されている．

GEANT4 は C++ で記述されており，ソースコードは完全に公開されている．

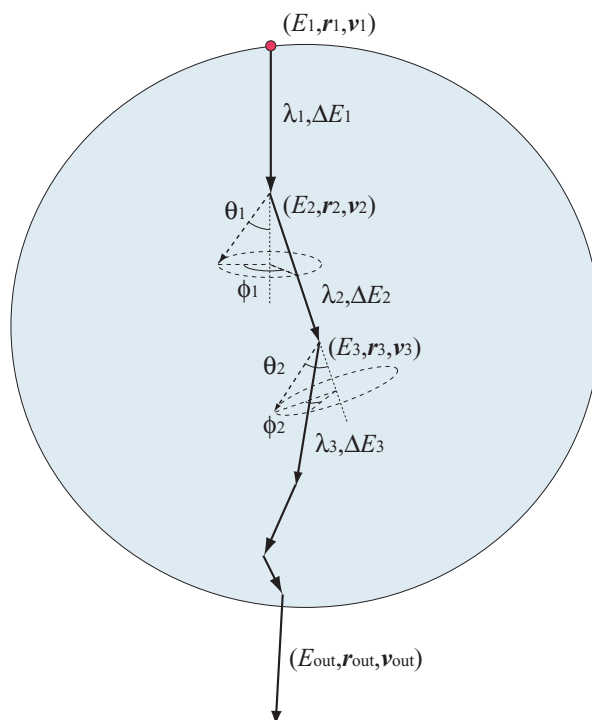


図 4.1 モンテカルロシミュレーション

GEANT4 はユーザーが独自に物理プロセス等を追加できるようにフレームワークが準備されており，非常に簡単な手続きで新しい物理モデルなどを検証できるようになっている．GEANT4 の概要についてはいくつかの論文が発表されているので，参照されたい [47, 48] ．

4.2 エネルギー損失計算

物質内で荷電粒子が受けるエネルギー損失について，本研究では ICRU49 や SRIM などの阻止断面積の値を元にエネルギー損失を計算できる，*G4hLowEnergyIonisation* クラスを用いて計算を行った．この節では，エネルギー損失計算について，実際のプログラムの計算の順に説明していく．

4.2.1 阻止断面積表の計算

本研究で用いたモンテカルロシミュレーションを実行すると、まず、入射荷電粒子のエネルギーに対する各物質の阻止断面積、阻止能、飛程の表が生成される。この際の阻止断面積計算には、ICRU49 や SRIM などを用いて計算するように指定できるが、本研究では主に ICRU49 の阻止断面積値を使用したため、ICRU49 の阻止断面積計算について説明する。

核子あたりのエネルギー T_s [keV/u] の陽子線に対する物質の阻止断面積 $\sigma_p(T_s)$ [10^{-15} eV/atom (or molecule)] について、以下のような経験式を用いて阻止断面積を求めることができる。

$$\sigma_{\text{low}}(T_s) = A_2 T_s^{0.45} \quad (4.1)$$

$$\sigma_{\text{high}}(T_s) = \frac{A_3}{T_s} \ln\left(1 + \frac{A_4}{T_s} + A_5 T_s\right) \quad (4.2)$$

$$\sigma_p(T_s) = \frac{\sigma_{\text{low}}(T_s) \sigma_{\text{high}}(T_s)}{\sigma_{\text{low}}(T_s) + \sigma_{\text{high}}(T_s)} \quad (4.3)$$

なお、ICRU 49 では、この式を 1.0 MeV/u 以下のエネルギーの陽子に対して採用している。1.0 MeV 以上の陽子に対する阻止断面積について、ICRU 49 では Bethe-Bloch の阻止能公式で求めた値を掲載している。本研究では、この数値表の値は使用せずに、全て (4.3) で求めた式で阻止断面積を計算し入力している。低エネルギーの陽子 ($1 < T_s < 10$ keV/u) に対する陽子の阻止断面積には

$$\sigma_p(T_s) = A_1 T_s^{0.5} \quad (4.4)$$

の式を用いて阻止断面積を求める。ICRU49 には、様々な物質のための各パラメーター $A_1 \sim A_5$ が表として提供されており、表 4.1 に本研究で利用した主な元素、物質のための各パラメーターを示す。

α 線に対する阻止断面積 σ_α についても同様の経験式があり、 α 線のエネルギー T [MeV]

Material	A_1	A_2	A_3	A_4	A_5
H	1.254	1.440	2.426×10^2	1.200×10^4	1.159×10^{-1}
C		2.601	1.701×10^3	1.279×10^3	1.638×10^{-2}
O	2.652	3.000	1.920×10^3	2.000×10^3	2.230×10^{-2}
Water(Liquid)	4.015	4.542	3.955×10^3	4.847×10^2	7.904×10^{-3}
Water(Vapor)	4.571	5.173	4.346×10^3	4.779×10^2	8.572×10^{-3}

表 4.1 陽子に対する阻止断面計算パラメーター (ICRU49) . C については , アモルフラスカーボンの数値を使用している .

Material	A_1	A_2	A_3	A_4	A_5
H	0.35485	0.6456	6.01525	20.8933	4.3515
C	3.83523	0.42993	12.6125	227.41	188.97
O	2.81015	0.4759	50.0253	10.556	1.0382
Water(Liquid)	2.9590	0.53255	34.247	60.655	15.153

表 4.2 α 線に対する阻止断面計算パラメーター (ICRU49) . C については , アモルフラスカーボンの数値を使用している .

に対して , 以下ようになる .

$$\sigma_{\alpha, \text{low}}(T) = a_1 (1000T)^{a_2} \quad (4.5)$$

$$\sigma_{\alpha, \text{high}}(T) = \frac{a_3}{T} \ln \left(1 + \frac{a_4}{T} + a_5 T \right) \quad (4.6)$$

$$\sigma_{\alpha}(T) = \frac{\sigma_{\alpha, \text{low}}(T) \sigma_{\alpha, \text{high}}(T)}{\sigma_{\alpha, \text{low}}(T) + \sigma_{\alpha, \text{high}}(T)} \quad (4.7)$$

α 線用のパラメーターは表 4.2 に示した . なお , ICRU 49 では , 10 MeV 以下の α 線に対して , 上の式が採用されている . 本研究では阻止断面を求めるために , 実際の物質の阻止断面 σ_{exp} として , ICRU49 の経験式で求めた阻止断面を定数 α 倍して , 阻止断

面積を計算した．式として表すと，以下のようになる．

$$\sigma_{\text{exp}}(T) = \alpha \sigma_p(T_s) \quad (4.8)$$

または，

$$\sigma_{\text{exp}}(T) = \alpha \sigma_\alpha(T) . \quad (4.9)$$

以上の式を元に阻止断面を求めた後，各物質の密度 ρ の積を取って，入射荷電粒子のエネルギー毎の阻止能 $-dE/dx = \rho \sigma_{\text{exp}}$ を求める．最終的に，入射荷電粒子のエネルギーに対する阻止能の表が生成されると，阻止能の表を元に入射粒子のエネルギーに対する飛程の表が生成される．

4.2.2 エネルギー損失計算

GEANT4 では各ステップ（散乱を受けてから，次の散乱を受けるまでの移動）毎のエネルギー損失を，入射粒子のエネルギーに対する飛程の表を元に計算している．今，エネルギー E の入射粒子の飛程を $R(E)$ とし，ステップ間の荷電粒子の移動距離を Δx とすると，平均エネルギー損失 $\overline{\Delta E}$ は，

$$R(E - \overline{\Delta E}) = R(E) - \Delta x \quad (4.10)$$

$$E - \overline{\Delta E} = R^{-1}(R(E) - \Delta x) \quad (4.11)$$

$$\overline{\Delta E} = E - R^{-1}(R(E) - \Delta x) \quad (4.12)$$

で表される．ここで， R^{-1} は $R(E)$ の逆関数であり， $R^{-1}(R(E)) = E$ である．

ここで求めた平均エネルギー損失 $\overline{\Delta E}$ に対して，実際のエネルギー損失にはストラグリングによるばらつきがある．GEANT4 では，平均エネルギー損失 $\overline{\Delta E}$ の大きさが大きい場合と，小さい場合との 2 通りに計算法を大きく分けて行う．以下の小節でその詳細について説明する．

4.2.2.1 $\overline{\Delta E}$ が大きい場合

透過距離 Δx 進む間に荷電粒子が失う平均エネルギー損失 $\overline{\Delta E}$ が、ボーアストラグリングモデルなどを適用できるガウス分布を取るには、標的物質の平均励起エネルギー I および、荷電粒子と標的電子の正面衝突に対応するエネルギー損失 T_{\max} が $\overline{\Delta E}$ に対して、次の条件を満たす必要がある。

$$\overline{\Delta E} > \kappa T_{\max} \quad \text{or} \quad T_{\max} < \kappa I \quad (4.13)$$

以上の条件を満たせば、平均エネルギー損失がガウス分布を取ると考えることが出来る。ただし、高速領域と低速領域とでは取り扱いが異なる。

荷電粒子 (原子番号 Z) の速度が大きい場合 ($\beta^2 > 3Z(v_0/c)^2$)、ボーアストラグリングモデルを適用し、ストラグリング幅 Ω は、

$$\Omega^2 = 2\pi a_0^2 m_e c^2 N_{\text{el}} T_{\max} \Delta x \frac{Z^2}{\beta^2} \quad (4.14)$$

となる。荷電粒子の速度が小さい場合 ($\beta^2 < 3Z(v_0/c)^2$)、Chu - Yang のストラグリングモデルを適用する。

$$\Omega^2 = 2\pi a_0^2 m_e c^2 N_{\text{el}} T_{\max} \Delta x \frac{Z^2}{\beta^2} f(Z) \quad f(Z) = a + \frac{b}{Z^2} \quad (4.15)$$

ここで、関数 $f(Z)$ のパラメーターは全ての原子に対しての表が提供されている [49, 50]。以上の用に求めたストラグリング幅 Ω を持ち、平均値が $\overline{\Delta E}$ のガウス分布を考え、乱数を用いて実際のエネルギー損失 ΔE を決定する。

4.2.2.2 $\overline{\Delta E}$ が小さい場合

平均エネルギー損失の量が小さい場合、個々の電離や励起を離散的な事象として取り扱わなくてはならないため、前述のガウス分布を実際のエネルギー損失の分布に適用することができなくなる。そこで、GEANT4 ではランダウのストラグリングモデルに基づいたストラグリン計算を行う。Lassila-Perini と Urabán らはランダウ理論をもとに、Monte Carlo シミュレーション用のエネルギーストラグリング計算用のアルゴリズムを提案した

[51]．ランダウのストラグリングモデルでは，標的物質の巨視的断面積 Σ を求める必要があるが，GEANT4 ではこの巨視的断面積 Σ を励起断面積 Σ_{ex} と，電離断面積 Σ_{ion} の二つに分けて計算を行う．

まず，励起については，原子には二つの励起準位 ($i = 1, 2$) しかないと仮定し，その巨視的な励起断面積 Σ_i を

$$\Sigma_i = C \frac{f_i \ln [2m_e c^2 (\beta\gamma)^2 / E_i] - \beta^2}{E_i \ln [2m_e c^2 (\beta\gamma)^2 / I] - \beta^2} (1 - r) \quad (4.16)$$

で定義する．ここで， I は平均励起エネルギーである． f_i は振動子強度であり，それぞれに対応するエネルギー準位を E_i とした． f_i と E_i には以下のような関係がある．

$$f_1 + f_2 = 1 \quad (4.17)$$

$$f_1 \ln E_1 + f_2 \ln E_2 = \ln I \quad (4.18)$$

次に，電離については，電離に伴うエネルギー損失が分布関数 $g(E) \sim 1/E^2$ に従うと仮定して，

$$\int_I^{T_{\text{max}}} g(E) dE = 1 \implies g(E) = \frac{IT_{\text{max}}}{T_{\text{max}} - I} \frac{1}{E^2} \quad (4.19)$$

と $g(E)$ を定義する．巨視的電離断面積 Σ_{ion} については，

$$\Sigma_{\text{ion}} = \Sigma_3 = C \frac{T_{\text{max}} - I}{IT_{\text{max}} \ln (T_{\text{max}}/I)} r \quad (4.20)$$

とする． Δx 透過する間に荷電粒子が行う各イベント ($n=1,2,3$) の衝突回数 n_i は，平均衝突回数を $\langle n_i \rangle$ としたポアソン分布を取る．ここで，平均衝突回数は，

$$\langle n_i \rangle = \Delta x \Sigma_i \quad (4.21)$$

で与えられる．平均エネルギー損失はこの平均衝突回数分の衝突を行った荷電粒子のエネルギー損失に対応するので，

$$\begin{aligned} \overline{\Delta E} &= \frac{dE}{dx} \Delta x = \left[E_1 \langle n_1 \rangle + E_2 \langle n_2 \rangle + \int_{E_0}^{T_{\text{max}}} E g(E) dE \langle n_3 \rangle \right] \\ &= \left[\Sigma_1 E_1 + \Sigma_2 E_2 + \Sigma_3 \int_{E_0}^{T_{\text{max}}} E g(E) dE \right] \Delta x \end{aligned} \quad (4.22)$$

で表されることになる．従って，最後に残ったパラメーター C は阻止能 dE/dx に相当することが分かる．また， r はエネルギー損失に対する電離と励起のイベントの寄与の割合であり， $r = 0.4$ を GEANT4 では標準設定として使用しており，本研究でもこの値を利用している． f_1, f_2 と E_1, E_2 [eV] については，

$$f_2 = \begin{cases} 0 & (Z < 2) \\ 2/Z & (Z > 2) \end{cases} \implies f_1 = 1 - f_2 \quad (4.23)$$

$$E_2 = 10Z^2 \implies E_1 = \left(\frac{I}{E_2^{f_2}} \right)^{1/f_1} \quad (4.24)$$

として決めた．ここで， E_2 は標的原子の近似して求めた K-shell 電子のエネルギーであり， Zf_2 は K-shell 電子の数に相当する．以上の様に求めたパラメーターを使って，実際のエネルギー損失を求める．なお，各衝突回数 n_i は平均衝突回数 $\langle n_i \rangle$ のポアソン分布から，乱数を用いて求める．電子励起によるエネルギー損失は

$$\Delta E_{\text{ex}} = E_1 n_1 + E_2 n_2 \quad (4.25)$$

で求める．次に電離によるエネルギー損失 ΔE_{ion} について計算する．1 回の電離に伴うエネルギー損失は分布関数 $g(E)$ によって与えられるので，これの逆関数より求める．

$$u = F(E) = \int_I^E g(x) dx \implies E = F^{-1}(u) = \frac{I}{1 - u \frac{T_{\text{max}} - I}{T_{\text{max}}}} \quad (4.26)$$

ここで， u は $F(I) = 0$ から， $F(T_{\text{max}} - I) = 1$ までの一様乱数である．この様にして一回，一回の電離に伴うエネルギー損失を計算する．これらのエネルギー損失の和が電離によるエネルギー損失 ΔE_{ion} となるので，衝突回数を n_3 として， ΔE_{ion} は

$$\Delta E_{\text{ion}} = \sum_{j=1}^{n_3} \frac{I}{1 - u_j \frac{T_{\text{max}} - I}{T_{\text{max}}}} \quad (4.27)$$

で与えられる．最後に，電離によるエネルギー損失と励起によるエネルギー損失の和が実際のエネルギー損失 ΔE となる．

$$\Delta E = \Delta E_{\text{ex}} + \Delta E_{\text{ion}} \quad (4.28)$$

以上が $\overline{\Delta E}$ が小さい場合のストラグリング計算の概略である．この計算方法の問題点として， $\overline{\Delta E}$ がさらに小さくなると， $\langle n_i \rangle$ が小さくなり，結果として $\Delta E = 0$ ，すなわちゼロイベントが生じる可能性が高くなってくる．この問題を回避するために，GEANT4 では次のような計算を行う．ゼロイベントの確立 $P(\Delta E = 0)$ ，

$$P(\Delta E) = \exp -(\langle n_1 \rangle + \langle n_2 \rangle + \langle n_3 \rangle) \quad (4.29)$$

が 0.01 を超える場合，荷電粒子は標的物質の外側電子とのみ相互作用すると考え，その外郭電子のエネルギー準位を $E_0 = 10 \text{ eV}$ とする．この衝突回数 $\langle n \rangle$ を

$$\langle n \rangle = \frac{\overline{\Delta E}}{E_0} \quad (4.30)$$

とし，実際の衝突回数 n をこれまでと同様にポアソン分布を仮定して求める．また，この衝突は全て電離であると仮定し，実際のエネルギー損失 ΔE は，

$$\Delta E = \sum_{i=1}^n \frac{E_0}{1 - u_i \frac{T_{\max} - E_0}{T_{\max}}} \quad (4.31)$$

となる．

4.3 散乱計算

2.7.1 節で述べたように，物質を透過する際に荷電粒子が受ける弾性散乱の断面積は遮蔽型ポテンシャルを用いて容易に求めることができる．モンテカルロシミュレーションにおいて課題となるのは，断面積自体を求めることよりも，散乱後の散乱角度 θ_C の決定である．最も簡単な方法として考えられるのは，0 から 1 までの一様乱数 u を用いて次のように散乱角度 θ_C を求める方法である．

$$u = \frac{2\pi \int_{\theta_C}^{\pi} \sigma'(\theta) \sin \theta d\theta}{\sigma_{\text{tot}}} \quad (4.32)$$

ここで， $\sigma'(\theta)$ は微分断面積であり， σ_{tot} は全断面積である．この方法は 1 回，1 回の散乱について微分断面積を求め，さらに積分計算を行う必要があり，多数回の散乱について計算を行う場合，時間がかかるという欠点がある．

Mendenhall と Weller はこの散乱角度の計算をアルゴリズムによって、省略する方法を提案し [52, 53] , GEANT4 のイオン散乱計算のためのクラス , *G4ScreenedNuclearRecoil* として採用されている . ここでは , その概要について解説する .

標的原子 (電荷 Z_2e) 荷電粒子 (電荷 Z_1e) の間の原子間ポテンシャル $V(r)$ を ,

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \phi\left(\frac{r}{a}\right) \quad (4.33)$$

とする . ここで , a は遮蔽長であり , r は原子間の距離である . ここで , 重心系における運動エネルギーを換算した物として , $\epsilon \equiv E_c a / Z_1 Z_2 e^2$ を導入する . なお , E_c は重心系における運動エネルギーである . さらに , 遮蔽長 a に対する衝突径数 b の比を $\beta \equiv b/a$ として ,

$$\theta_C = \pi - 2\beta \int_{x_0}^{\infty} f(z) dz / z^2 \quad f(z) = \left(1 - \frac{\phi(z)}{z\epsilon} - \frac{\beta^2}{z^2}\right)^{-1/2} \quad (4.34)$$

となる . Mendenhall らはこの積分について分析し , θ_C が次のように与えられることを示した [52] .

$$\theta_C = \pi - \frac{\pi\beta\alpha}{x_0} \quad (4.35)$$

ここで , $x_0 = r_{\text{close}}/a$ は再近接距離 r_{close} を遮蔽長で割った物であり , α と λ_0 は ,

$$\alpha \approx \frac{1 + \lambda_0}{30} + \sum_{i=1}^4 w'_i f\left(\frac{x_0}{q_i}\right) \quad (4.36)$$

$$\lambda_0 = \left(\frac{1}{2} + \frac{\beta^2}{2x_0^2} - \frac{\phi'(x_0)}{2\epsilon}\right)^{-1/2} \quad (4.37)$$

で与えられる . 計算に必要なパラメーター w'_i, q_i については , $w'_i \in [0.03472124, 0.1476903, 0.23485003, 0.1860249]$, $q_i \in [0.9830235, 0.8465224, 0.5323531, 0.18347974]$ である . 最後に , 遮蔽関数 $\phi'(x_0)$ は任意の遮蔽関数である . この方法によって , 積分計算のような計算時間のかかる計算を省略して , 簡単に衝突径数 b から散乱角度 θ_C を求めることができる .

散乱角度分布を決める重要なパラメーターである衝突径数 b は , TRIM[13] のアルゴリ

ズムと同じ物を GEANT4 でも使用している．衝突径数の累積確率分布関数 $P(b)$ は

$$P(b) = 1 - \exp\left(\frac{-\pi b^2}{\sigma_{\text{tot}}}\right) \quad (4.38)$$

で与えられる．ここで， $N\sigma_{\text{tot}} \equiv 1/l_\mu$ であり， N は標的原子の数密度， l_μ は平均自由行程である．ここで，0 を除く 1 までの一様乱数 $r \in (0, 1]$ を用いて，

$$b = \sqrt{\frac{-\log r}{\pi N l_\mu}} \quad (4.39)$$

で決める．

最後に，荷電粒子が標的内で散乱を受けてから，次の散乱を受けるまでの間に進む距離 Δx について考える． Δx の確率分布は

$$P(\Delta x) = \frac{1}{l_\mu} \exp\left(-\frac{\Delta x}{l_\mu}\right) \quad (4.40)$$

で与えられるので，0 を除く 1 までの一様乱数 $R_1 \in (0, 1]$ に対して，

$$R_1 = \int_0^{\Delta x} P(x) dx = 1 - \exp\left(-\frac{\Delta x}{l_\mu}\right) \quad \therefore \Delta x = -l_\mu \ln(R_1) \quad (4.41)$$

となる．

ここまでは特に触れてこなかったが，本研究における標的物質の大半は水などの化合物であるため，標的内には数種類の原子が存在する．そこで，散乱計算の場合，どの原子と衝突したかが重要となるため，それを決定する必要がある．そこでまず，化合物標的中の平均自由行程 l_μ を次のように決める．

$$\frac{1}{l_\mu} = \frac{1}{l_H} + \frac{1}{l_O} + \frac{1}{l_C} \quad (4.42)$$

ここで， l_H, l_O, l_C は H, C, O それぞれについての平均自由行程である．つづいて，どの原子と衝突したかは，平均自由行程の比から求める．

$$\begin{cases} R_2 < l_H^{-1}/l_\mu^{-1} & \text{H と衝突} \\ l_H^{-1}/l_\mu^{-1} < R_2 < (l_H^{-1} + l_O^{-1})/l_\mu^{-1} & \text{O と衝突} \\ (l_H^{-1} + l_O^{-1})/l_\mu^{-1} < R_2 & \text{C と衝突} \end{cases} \quad (4.43)$$

ここで， R_2 は 0 から 1 までの一様乱数である．実際の計算では以上のように標的原子を決定した後，その標的原子との荷電粒子との衝突による散乱角度計算を行う．

散乱角度計算の最後に，Cutt Off について説明する．平均自由行程の大きさを決める全散乱断面積は次の様に計算して求める．

$$\sigma_{\text{tot}} = 2\pi \int_{\theta_{\min}}^{\pi} \sigma'(\theta) d\theta \quad (4.44)$$

ここで， θ_{\min} は積分の下限である．GEANT4 では，この θ_{\min} を Cutt Off エネルギー E_{\min} を用いて以下のように決める．

$$E_{\min} = E_{\text{inc}} \frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} \sin^2 \frac{\theta_{\min}}{2} \quad (4.45)$$

GEANT4 では標準設定の値として， $E_{\min} = 10$ eV としており，前方多重散乱の計算用として 1 ～ 10 eV の値を使用することを推奨している [53]． θ_{\min} は散乱角度計算にどの程度の散乱までを考慮に入れるかを意味しており，計算の対象と目的に応じて適切に選択する必要がある．

例えば， E_{\min} を大きく設定すると，全散乱断面積は小さくなり，結果として散乱角度計算の回数が減るため，計算速度の向上を図ることができる．しかし，小角散乱を考慮に入れなため，角度が小さい領域での散乱角度分布計算の精度が落ちてしまう．したがって，この様な設定は後方散乱のような散乱の角度分布を計算するのに向いていると言える．逆に，後方散乱の角度分布計算において， E_{\min} を小さく設定することは無駄が非常に多い (mrad オーダーの散乱を 1000 回計算しても $3\pi/4$ rad には絶対にならない)．

逆に， E_{\min} を小さく設定すると，全散乱断面積は大きくなり，結果として散乱角度計算の回数が増える．そのため，計算速度は遅くなる．しかし，小角散乱を考慮に入れるため，小角領域の散乱角度分布計算の精度が向上することが期待できる．従って，単純に考えれば，小角散乱の計算には E_{\min} を小さく設定すればよいことになる．しかし，計算時間は現実的に可能な範囲で設定する必要があるため， E_{\min} はいたずらに小さくすることはできない．さらに E_{\min} を小さくすることで生じる重大な問題として， E_{\min} に相当する荷電粒子の衝突径数が大きくなるという問題がある．本研究で対象としている MeV エネ

ルギー領域の荷電粒子において, $E_{\min} = 1$ eV に相当する衝突径数は 0.4 \AA 程度 (1 MeV の H^+ と H 原子の衝突において) となる. これは Universal ポテンシャルの遮蔽長の 2 倍に相当する大きさであり, 荷電粒子の運動エネルギーが小さくなるとさらに大きくなる. この様に大きな衝突径数に相当する原子間ポテンシャルを考えるには, 周辺分子による分極などに起因する状態効果などを考慮する必要があるため, Universal ポテンシャルなどの原子間ポテンシャルを用いて計算した値が必ずしも正しいとは言えなくなる. この問題点から, E_{\min} を 1 eV 以下に設定することを避ける様に, このアルゴリズムの提供者である Mendenhall らは警告している [53].

そこで, 実際の E_{\min} の値は計算する対象や環境などに応じて適切に選択する必要がある. 本研究では, E_{\min} は標準設定である 10 eV を設定している. この値に対応する θ_{\min} は MeV 領域の荷電粒子の衝突において数 mrad に相当する. この条件において液体標的の中心部分を透過する荷電粒子に対して, モンテカルロシミュレーションでは $10^2 \sim 10^3$ 回の散乱計算を行う. 検出器を構成している領域は $10 \sim 50 \text{ mrad}$ であり, 計算回数としては十分である. 一方で, 透過距離が $1.0 \text{ }\mu\text{m}$ を切る領域では衝突回数が 10 回を下回ってくるため, 散乱角度分布計算の精度が著しく低下する. しかし, この様な透過距離に相当する粒子は直径 $20 \text{ }\mu\text{m}$ の液体標的に入射する粒子全体の 0.1% 程度であり, 問題にならない. 逆に標的に入射する 90% 以上の粒子の透過距離は $10 \text{ }\mu\text{m}$ であり, 標的内で 100 回以上の散乱を受けていることになる. よって, 本研究における散乱角度分布計算については十分な統計的精度が担保されている.

4.4 計算環境

最後に, 本研究で使用した計算環境について説明する. 本研究では, 大きく二つの環境を用いてモンテカルロシミュレーション計算を行った. 表 4.3, 4.4 に, 計算環境の概略を示す. なお, 計算時間の短縮のため, 本研究では MPI(Message Passing Interface) を用いた並列計算を行っており, MPI を用いた並列計算用の拡張ツールである *G4MPI* を使用して乱数管理などを行っている.

項目	
CPU	Intel Corei7 920
コア数	4
メモリ	3 GB
OS	Gentoo Linux(Kernel 2.6.30)
GEANT4 バージョン	9.2.p02
スレッド数	8
台数	4 台
同時計算プロセス数	32
計算粒子数	10^7 個

表 4.3 研究室の並列計算環境

項目	
CPU	AMD Opteron 8356
CPU 数	32 個
メモリ	64 GB
OS	Red Hat Enterprise Linux(Kernel 2.6.9)
GEANT4 バージョン	9.2.p03
同時計算プロセス数	32
計算粒子数	10^8 個

表 4.4 大型計算機の並列計算環境

第 5 章

Al ワイヤー標的透過後の 2.5 MeV H^+ の測定

本研究の最終目的は液体物質の阻止断面積を測定し，液体物質内での荷電粒子のエネルギー損失過程について考察することであるが，そのために用いた阻止断面積測定実験について検証を行うために，まず，阻止断面積，直径が既知である直径 $25\ \mu\text{m}$ の Al ワイヤー標的に 2.5 MeV の H^+ を照射し，標的透過後のエネルギー分布，散乱角度分布の測定を行い，本研究で用いたモンテカルロシミュレーションのリファレンスデータとした．本章では，その測定結果と考察について記述する．

5.1 Al ワイヤー標的

実験で使用した Al ワイヤーはニラコで市販している純度 99.999 % の物を使用した．適当な長さに切り取った Al ワイヤーを張ったコの字状の金具をノズルの代わりに先端に取り付け，衝突槽の中心に設置した．なお，Al ワイヤーが帯電しないように，導通がとれていることをテスターを用いて確認し，水平に入射するビーム軸に対して鉛直に設置されていることを，ビームライン下流に設置したトランジットおよび，HeNe レーザーによる干渉縞によって確認した．実験前，実験後，照射点周辺の Al ワイヤー標的の直径をレー

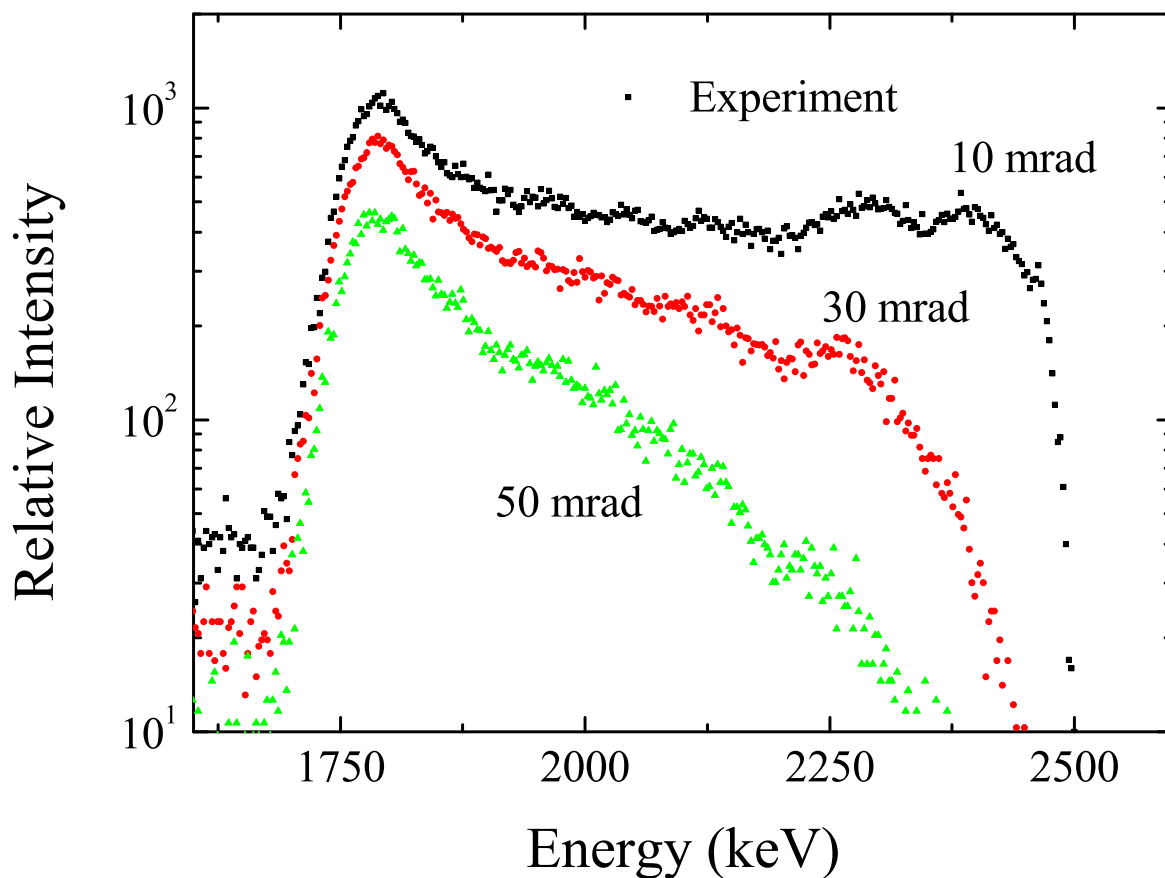


図 5.1 2.5 MeV H^+ の Al ワイヤー標的透過後のエネルギー分布

ザー顕微鏡を用いて測定したところ、直径は $25.3 \mu\text{m}$ であった。

5.2 標的透過後の H^+ のエネルギー分布

まず、エネルギー分布の測定結果を図 5.1 に示す。エネルギー分布の縦軸の相対強度は、ビーム電流校正用に設置した下流 SSD のカウントで規格化している。図から分かるように、散乱角度毎に異なるエネルギー分布を示すが、全体として、1800 keV 付近にピークを持ち、エネルギー損失の小さい肩の部分の強度が散乱角度が大きくなるにつれて小さくなる傾向があることが分かる。

このようなエネルギー分布を示す大きい理由として、標的が円柱の形状をしていること

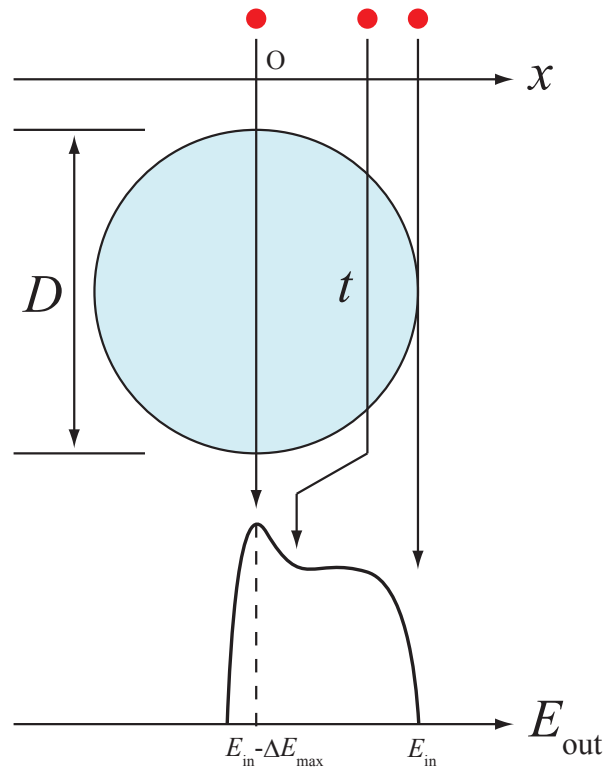


図 5.2 エネルギー損失分布モデル

が挙げられる．今，図 5.2 の様なモデルを使って，このエネルギー分布の説明を試みる．図の中心にある直径 D の正円を標的の断面とし，そこに様々な入射位置 x でエネルギー E_{in} の荷電粒子が x 軸方向に均一に入射するとする．なお， x 軸の原点 $O(x = 0)$ は標的の中心を通る位置とする．まず，標的の内を透過する際に荷電粒子が受ける散乱については考えず，荷電粒子は標的の内をほぼ直進し，最後に 1 回散乱されて検出器に入射すると仮定する．なお，最後の 1 回散乱によるエネルギー損失については無視する．位置 x に入射した荷電粒子は標的の内を透過距離 t だけ透過する．このとき， t と x の関係は，

$$t = \sqrt{D^2 - 4x^2} \quad (5.1)$$

となる．標的透過後の荷電粒子のエネルギー E_{out} は， t, x によって，それぞれ以下のよ

うに表される．

$$E_{\text{out}} = R^{-1}(R(E_{\text{in}}) - t) = R^{-1}(R(E_{\text{in}}) - \sqrt{D^2 - 4x^2}) \quad (5.2)$$

ここで， $R(E)$ はエネルギー E の荷電粒子の飛程であり， R^{-1} はその逆関数である．このことから，低エネルギー側のピークが標的の中心を通過した荷電粒子に相当することが分かる．次に，透過距離 $t \sim t + dt$ を通過する入射粒子数 ($N(t)dt$) について考える．まず， dt と dx の関係について考えると，

$$dx = -\frac{tdt}{2\sqrt{D^2 - t^2}} \quad (5.3)$$

となる． $x \sim x + dx$ の位置に入射する荷電粒子数と，それに対応する $t \sim t + dt$ の範囲に入射する荷電粒子数は等しいので，

$$\frac{N_0}{D} dx = -\frac{N_0}{D} \frac{tdt}{2\sqrt{D^2 - t^2}} = -N(t)dt \quad (5.4)$$

となる．ここで， N_0 は標的に入射する全荷電粒子数である．よって， $N(t)$ [μm^{-1}] は，

$$N(t) = \frac{N_0 t}{2D\sqrt{D^2 - t^2}} \quad (5.5)$$

で表される．以上のようにして，標的内で荷電粒子が散乱を受けずに直進して透過した場合のエネルギー分布を計算した．なお，エネルギー損失の計算に使用した飛程は SRIM 2008[13] を用いて求めた．計算結果を図 5.3 に示す．なお，計算結果の縦軸は実験結果の分布と同程度となるようにし，エネルギー分布の形状を比較しやすいようにした．計算結果の分布を見ると，1800 keV 付近に強度のピークを持ち，高エネルギー側に肩を持つことが分かる．この事実は実験結果の分布の概形と非常に良く一致している．特に，散乱角度 30, 50 mrad のエネルギー分布について，実験結果の肩の部分の分布と計算結果の分布の形状が非常に良く一致している．一方で，標的の中心部分を透過した荷電粒子に相当する 1800 keV 付近のピークは，実験結果の強度に対して，計算結果の強度が極端に高く，再現することができていない．また，10 mrad のエネルギー分布については，計算結果と実験結果に大きな差が見られる．特に標的をかすめるように透過した部分に相当する肩の部分は，計算よりも実験結果の方が強度が大きく，再現できていない．

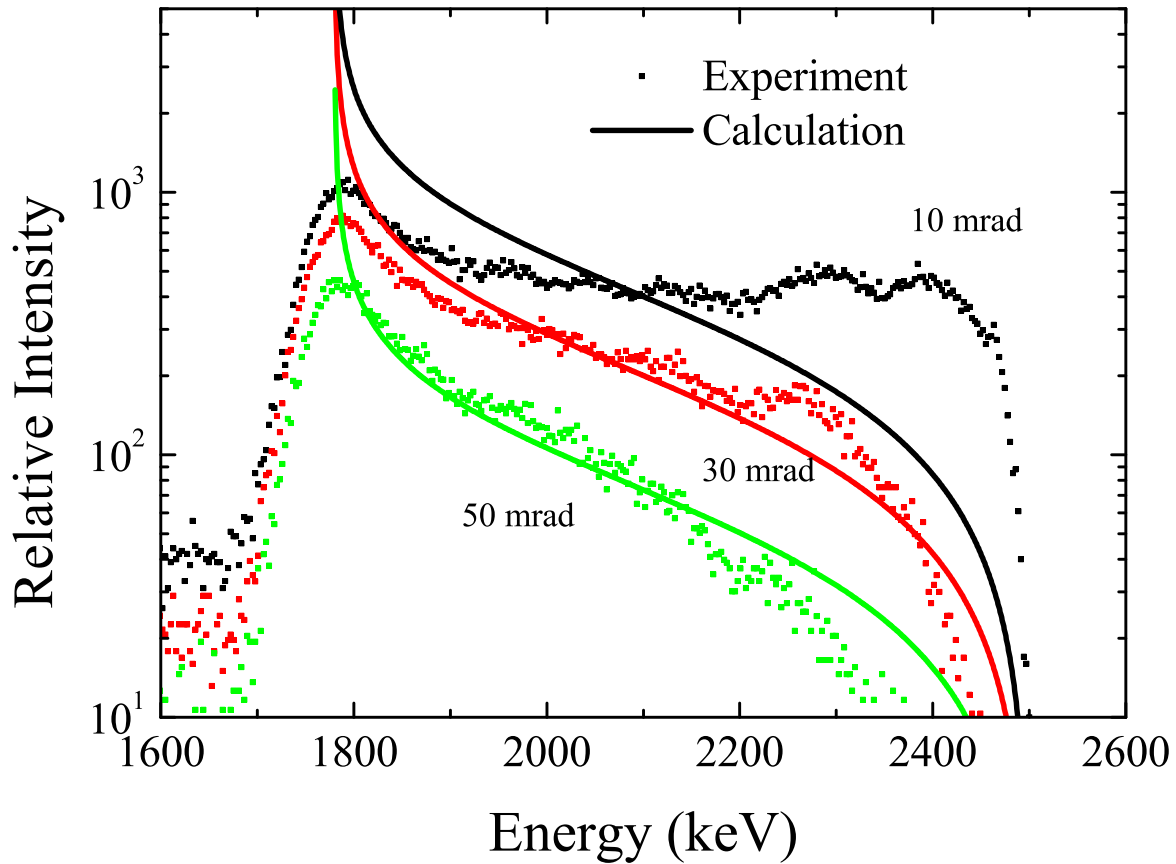


図 5.3 エネルギー分布の再現．計算結果の縦軸は，散乱の分布に対して同程度の高さになるように規格化した．

このような計算結果と実験結果の差は，標的内での荷電粒子の多重小角散乱を考慮することで説明することができる．まず，標的中心を透過した荷電粒子に相当する 1800 keV 付近のピーク強度が計算結果よりも実際のピークが小さくなるのは，標的中心を通る荷電粒子は透過距離が大きい分，強く散乱されてしまい，検出器に入ってこなくなるためである．逆に，10 mrad の様な小角で検出器を構えると，標的をかすめるように入射した荷電粒子でも，散乱されて検出器に入射するため，散乱を考慮しない計算結果よりも肩の部分の強度が大きくなる．以上のような説明の正しさを強く反映しているのが，50 mrad のエネルギー分布である．50 mrad の散乱を受けるためには，標的内で比較的大きい散乱が繰り返される必要があり，実際にはその様な確率は非常に小さくなる．エネルギー分布の肩の部

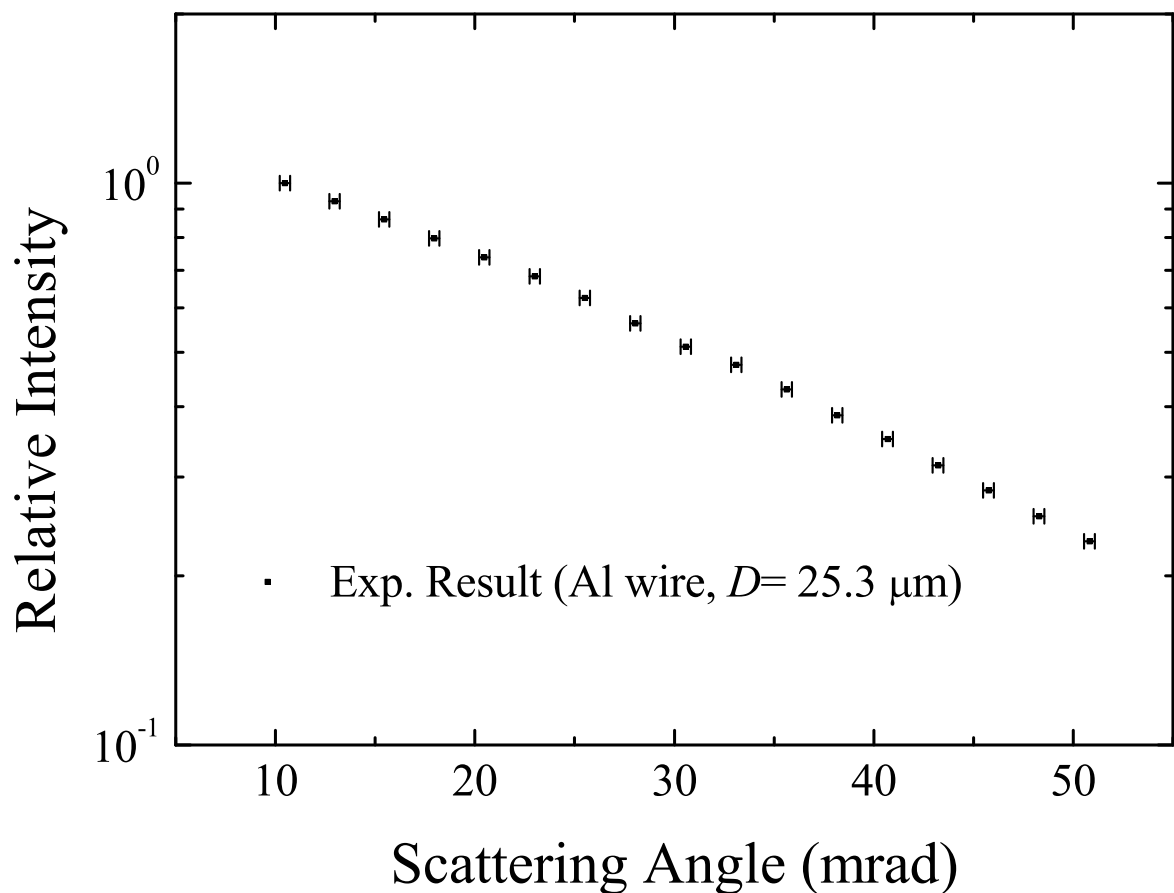


図 5.4 2.5 MeV H^+ の Al ワイヤー標的透過後の散乱角度分布

分に相当する標的をかすめるような位置に入射した荷電粒子は，計算で仮定した 1 回散乱による検出器への入射という条件に近くなる．そのため，実際の 50 mrad のエネルギー分布は計算結果と非常に良く一致する．

5.3 標的透過後の H^+ の散乱角度分布

次に，標的透過後の H^+ の散乱角度分布を図 5.4 示す．図で，横軸は散乱角度，縦軸は相対強度とした．相対強度は上流 SSD の総カウント数と，下流 SSD の総カウント数の比を 10 mrad の位置で 1 となるように規格化してプロットした．なお， x 軸のエラーバーは散乱角度測定における測定角度の不確かさである．

前節では、荷電粒子が標的内で多重散乱されていると考えることでエネルギー分布を上手く説明できると考えた。散乱断面積は散乱角度の 4 乗に反比例して減少するので、もし、標的内で荷電粒子が多重散乱を受けていないのであれば、散乱角度分布の相対強度は散乱角度の 4 乗に反比例して減少するはずである。しかし、図 5.4 を見ても分かるように、実際の散乱角度分布は散乱角度の 4 乗に反比例するような急激な減少は見せず、非常になだらかに減衰している。このような散乱角度分布は多重散乱の特徴的な散乱角度分布であり、この事実から、標的内で荷電粒子が標的原子と衝突を繰り返す多重散乱を行っていることが分かる。

5.4 モンテカルロシミュレーションによる再現計算

本研究の目的の一つは標的透過後の荷電粒子のエネルギー分布と散乱角度分布から、標的物質の阻止断面積を求めることである。5.2 節、5.3 での実験結果に関する考察から、実験結果を再現するには、標的内での荷電粒子の多重散乱を考慮に入れた計算モデルを使用する必要があることが分かった。荷電粒子の多重散乱を計算する手法としては、多重散乱理論に基づいた計算法として、Molière 理論がある [54]。しかし、多重散乱理論に基づいた計算を行うには、標的内で数十回程度の小角散乱が起きている必要があり、極端に薄い標的に対してこの計算を行うことはできない。本研究で標的としている Al ワイヤー標的や液体分子線標的の場合、標的をかすめるように入射した荷電粒子線について多重散乱理論に基づいた計算を適用することはできない。また、多重散乱理論計算では、標的内での荷電粒子のエネルギーをある一定の有効エネルギー [55] であると仮定して、散乱断面積を計算する。そのため、エネルギー損失の量が入射エネルギーに対して大きくなると、正確に散乱を計算することができなくなるという欠点もある。そこで、本研究では第 4 章で述べた、GEANT4 を用いて作成したモンテカルロシミュレーションによって、標的内での荷電粒子の散乱を逐次計算し、実験結果を再現することを試みた。

計算条件としては、まず、標的に対して、荷電粒子は均一に入射するとした。次に、標的内において荷電粒子はエネルギー損失と弾性散乱のみを行うとし、第 4.1 章で説明し

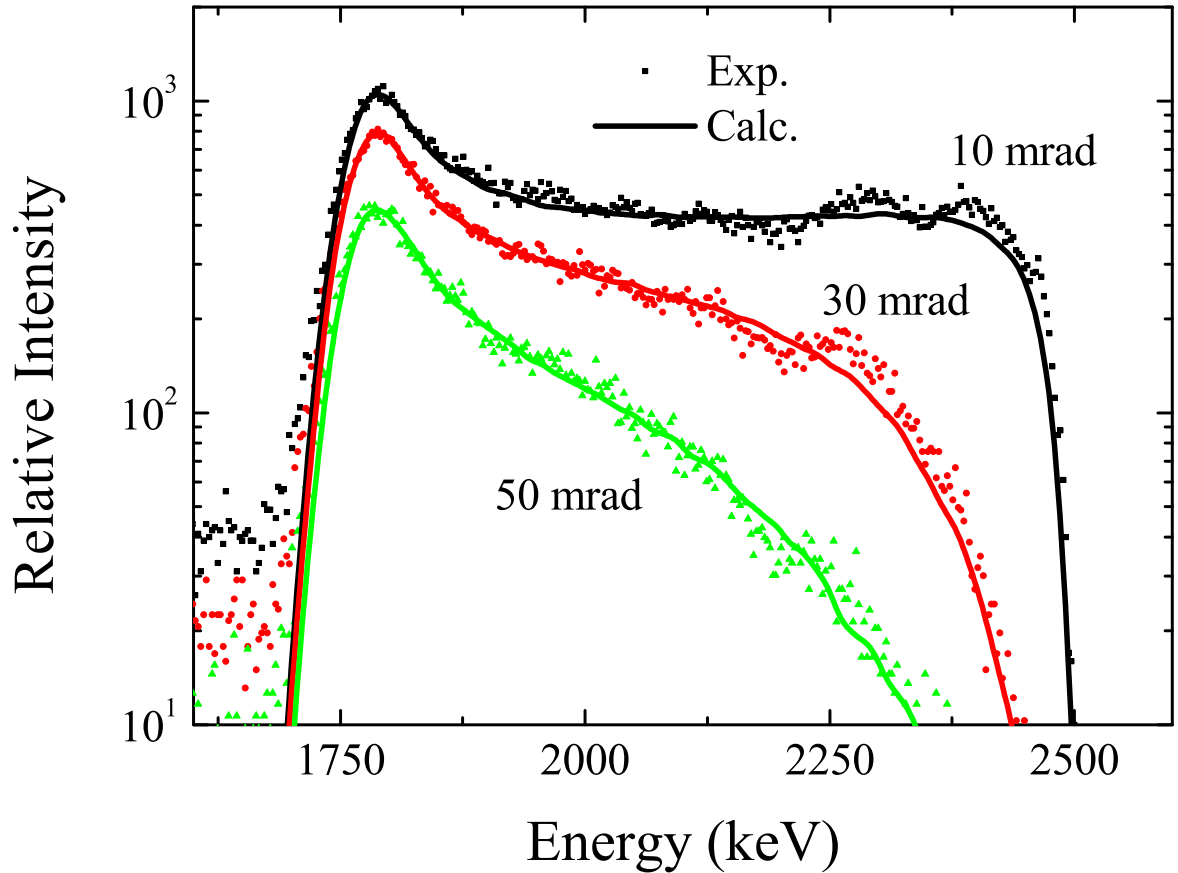


図 5.5 2.5 MeV H^+ の Al ワイヤー標的透過後のエネルギー分布の再現計算結果

た計算法によって計算を行った．なお，弾性散乱の計算に必要な原子間ポテンシャルには Universal ポテンシャルを用いた．標的の直径はレーザー顕微鏡で測定した結果である $D = 25.3 \mu\text{m}$ をとし，標的物質である Al の阻止断面積は ICRU49[12] のパラメーターを用いた計算法で求めた．なお，モンテカルロシミュレーション内では，標的や検出器は実際の実験環境と同じ幾何学的配置，形状をしていると設定して計算を行っている．また，計算した粒子数は 10^8 個である．

まず，エネルギー分布についての計算の結果を図 5.5 に示す．図から分かるように，エネルギー分布の再現計算結果は実験結果と全ての散乱角度において良く一致する．特に注目すべきなのは，10 mrad の再現計算結果が荷電粒子の入射エネルギーである 2.5 MeV まで計算されていることである．多重散乱理論を用いて計算する場合，標的をかすめるよ

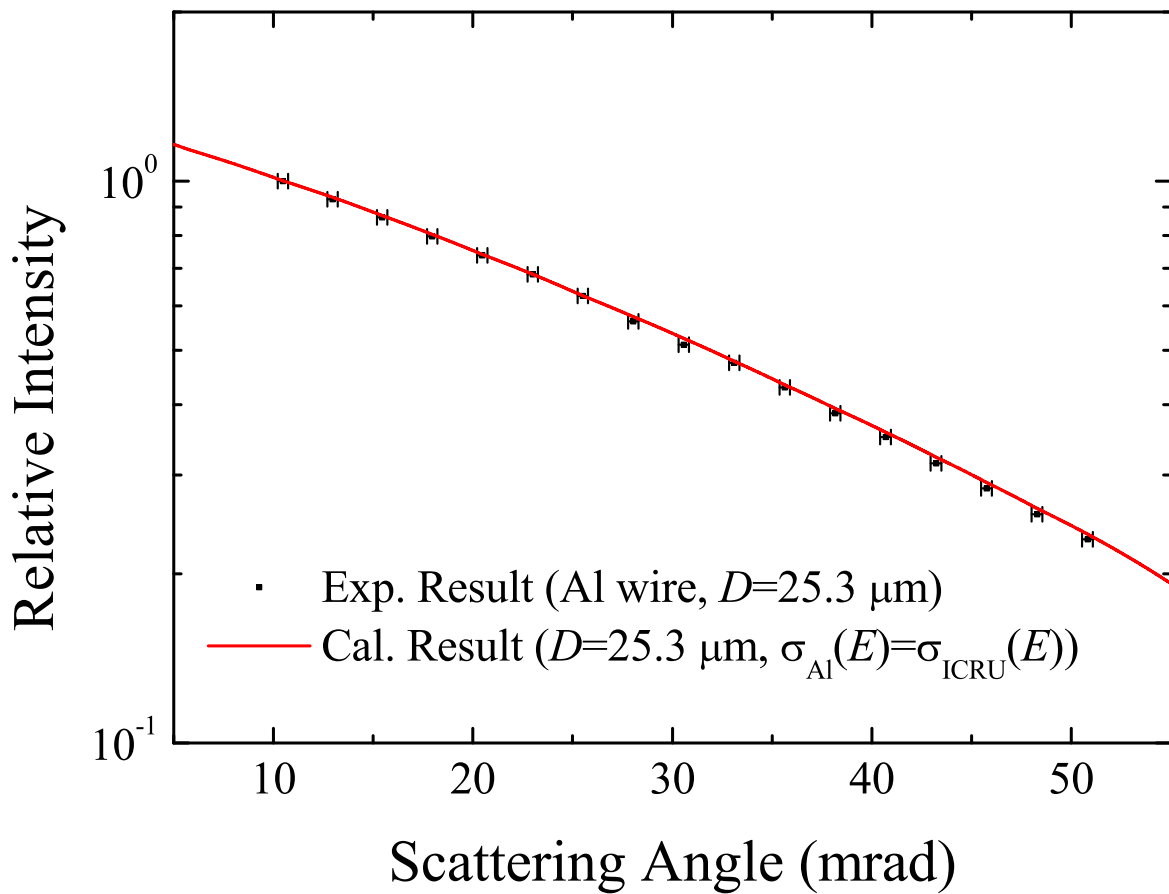


図 5.6 2.5 MeV H^+ の Al ワイヤー標的透過後の散乱角度分布の再現計算結果

うに入射する荷電粒子については計算を省くしかないので、この部分までのエネルギースペクトルを描くことは難しくなる。

再現計算によるエネルギー分布と実験結果のエネルギー分布を比較すると、10 mrad の肩の部分に再現計算の結果には無い不規則な凹凸が実験結果にはあることが分かる。この凹凸は 30 mrad、50 mrad の分布にも同じような位置 (2300 keV 付近) に見られる。これは Al ワイヤー表面の粗さによって、生じていると考えられるが、エネルギー分布全体においてごくわずかなので、無視して良い。

続いて、散乱角度分布の再現計算を図 5.6 に示す。エネルギー分布の再現計算と同様に、散乱角度分布についても実験結果と再現計算の結果が非常に良く一致していることが

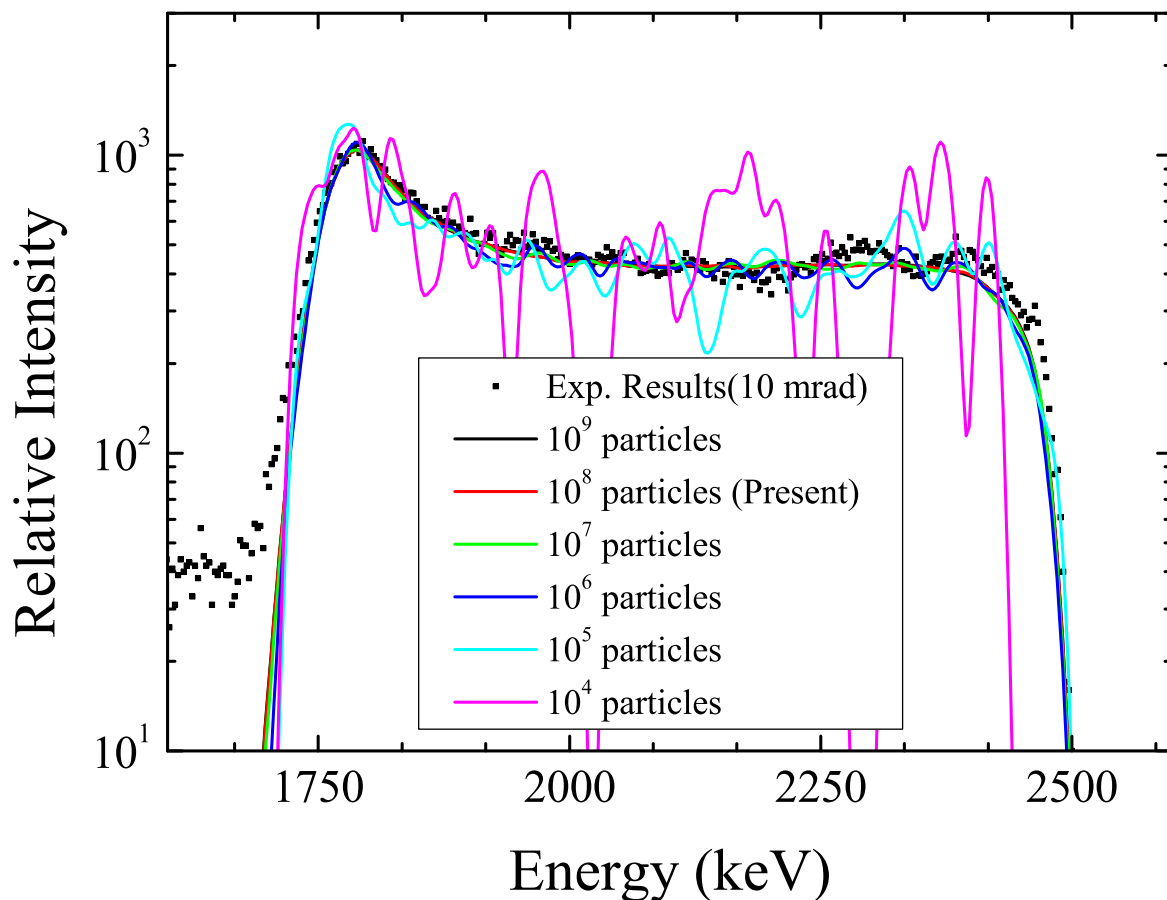


図 5.7 計算した粒子数によるエネルギー分布の再現計算結果の変化

分かる．以上の結果から，本研究で作成したモンテカルロシミュレーションで標的透過後のエネルギー分布，散乱角度分布を非常に良く再現することができることが分かった．

5.5 再現計算の統計精度評価

本研究のモンテカルロシミュレーションでは 10^8 個の荷電粒子について計算を行い，実験結果の再現を行っている．モンテカルロシミュレーションによる再現計算において最も重要なのは統計精度である．従って，計算する粒子の数は多ければ多いほどよいが，実際には計算時間等の制約があるために計算する粒子を無限に多くする事は出来ない．図 5.7 に計算する粒子数を変化させた場合のエネルギー分布の再現計算結果を示す．図から分か

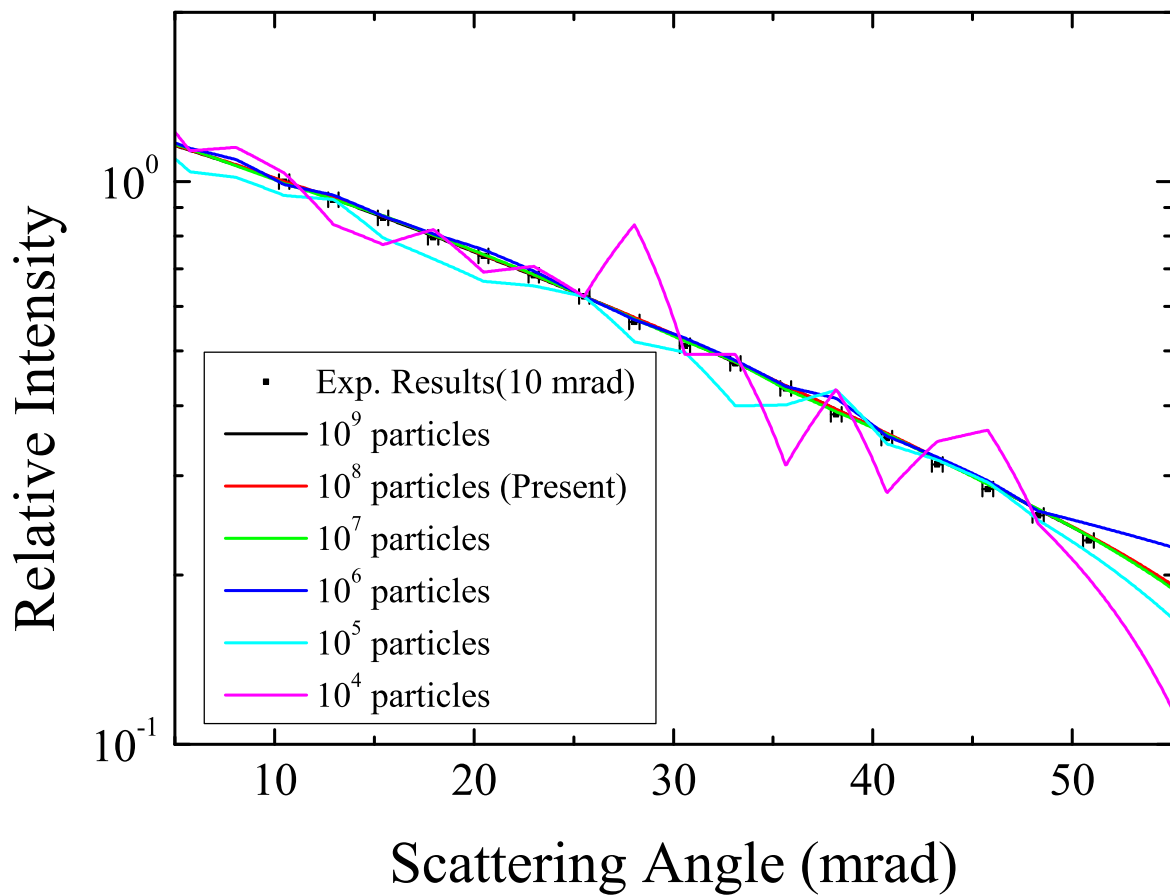


図 5.8 計算した粒子数による散乱角度分布の再現計算結果の変化

るように，計算する粒子数が 10^6 個を下回ると極端に計算結果のエネルギー分布に凹凸が生じ， 10^4 個の場合に至っては実験結果のスペクトルをほとんど再現できていない．逆に 10^7 個以上では計算結果にほとんど差が見られないことが分かる．

散乱角度分布の再現計算についても，計算する粒子数を変えた場合の計算結果を比較した．散乱角度分布の再現計算結果を図 5.8 に示す．図から分かるように，散乱角度分布においても計算する粒子数が 10^6 個を下回ると計算結果の曲線に不規則な凹凸が現れる事が分かる．逆に 10^7 個以上ではそれぞれの計算結果の間にほとんど差は見られなかった．

以上の結果から，計算する粒子数が 10^7 個以上あれば計算結果にほとんど差が見られないことが分かった．従って計算すべき粒子数の下限は 10^7 個である．一方で，計算する粒子

数の上限は前述のように計算時間によって制約を受ける．本研究では 10^8 個を計算するのに 10 分から 30 分程度の時間を要する．計算時間は計算する粒子数に比例するため， 10^9 個計算した場合は 100 分以上の時間を要する事になる．再現計算によって標的の阻止断面積を求めるには少なくとも数十回程度のパターンについて計算を行う必要があり， 10^9 個以上の粒子数について計算を行うことは現実的ではない．そこで，本研究では計算する粒子数を 10^8 個に設定して計算を行った．

5.6 原子間ポテンシャルの比較

本研究で用いたモンテカルロシミュレーションでは，Universal ポテンシャルを原子間ポテンシャルとして用いて計算した散乱断面積で実験結果の再現を行っている．小角散乱を計算する場合，原子間ポテンシャルの種類によって散乱断面積が異なることが予想されるが，その結果がモンテカルロシミュレーションの再現計算結果にどのように影響するかを考察した．

比較を行った原子間ポテンシャルは Universal，Bohr，Moliere，Lenz-Jense の 4 種類である．まず，Bohr ポテンシャルで計算した散乱角度分布の計算結果を図 5.9 に示す．図から分かるように Bohr ポテンシャルで計算した結果は散乱を過小評価する傾向があることが分かる．その他のポテンシャルについても計算を行ったが，その他の原子間ポテンシャルは Universal ポテンシャルを用いた結果とほとんど差が見られなかったので，省略した．さらに参考として，多重散乱理論を用いた計算例として，GEANT4 が内部に持つ多重散乱理論に基づいた多重散乱計算クラス *G4MultipleCoulombScattering*(G4MCS) を用いて計算を行った結果を示す．なお，使用したのは GEANT4 の高精度計算用設定セット *EMStandard_Opt3*(Opt3) である．結果から分かるように，GEANT4 の多重散乱計算による散乱計算では，本研究で用いた標的を透過した荷電粒子の散乱角度分布を上手く再現できないことが分かる．ただし，GEANT4 の多重散乱計算クラスは高エネルギーの荷電粒子が分厚い標的を透過する際の散乱角度分布を再現するために製作されたもので，そもそも本研究の標的に対してそのまま適用することはできない．実際に本研究で対

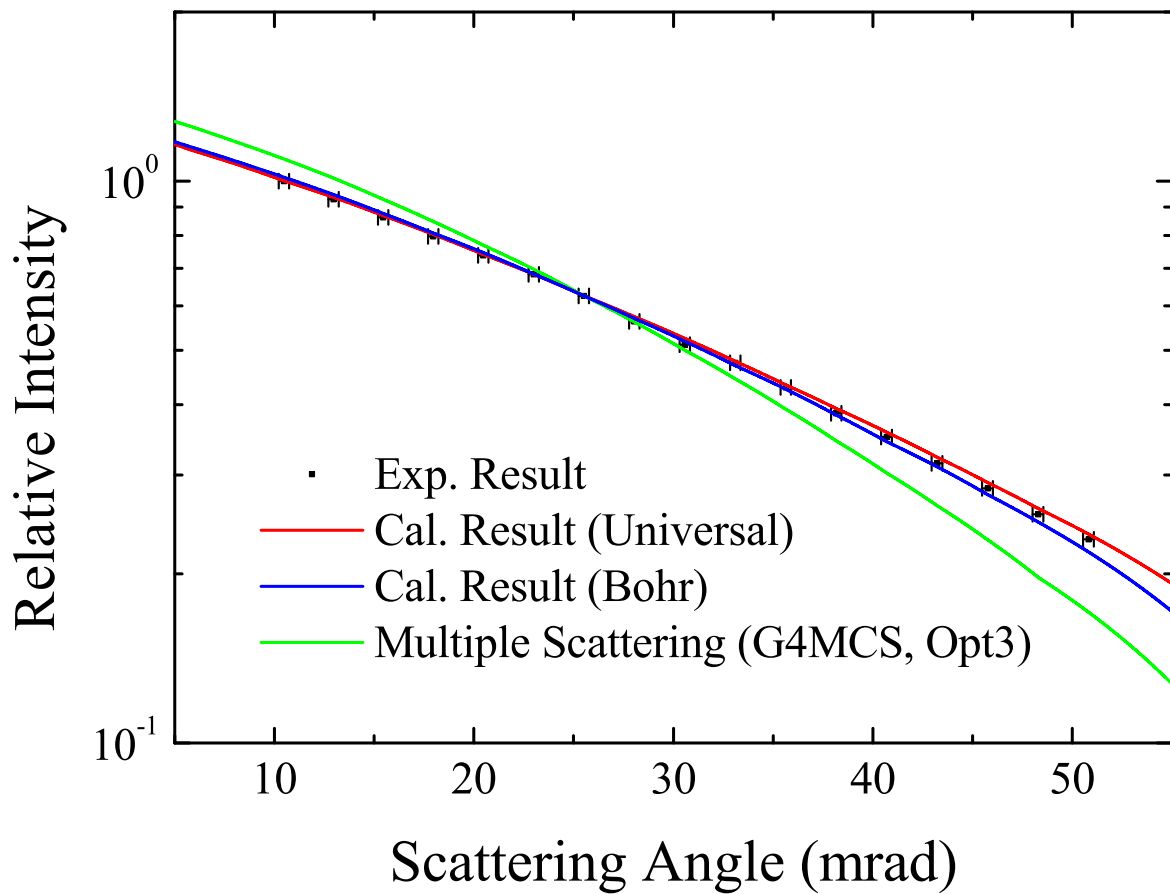


図 5.9 原子間ポテンシャルによる散乱角度分布計算結果の比較

象としているエネルギーの荷電粒子や標的の衝突に，この多重散乱クラスを使用する場合は，幾つかの補正用のパラメーターを与え，実験結果とあうようにして計算を行う．言い換えれば，補正用のパラメーターの与え方次第では，計算結果がいくらでも変わってしまうため，この G4MCS クラスを本研究の計算に使用することはなかった．

最後に，各原子間ポテンシャルを用いて再現計算を行った場合について，実際の散乱角度分布の相対強度と計算結果のずれを示した物を図 5.10 に示す．図から分かるように，Bohr ポテンシャルを除くそれぞれの原子間ポテンシャルにおいて，それほど大きな差は見られなかった．このことから，原子間ポテンシャルの選択によって，極端に計算結果に差が発生することは考えにくいことが分かる．

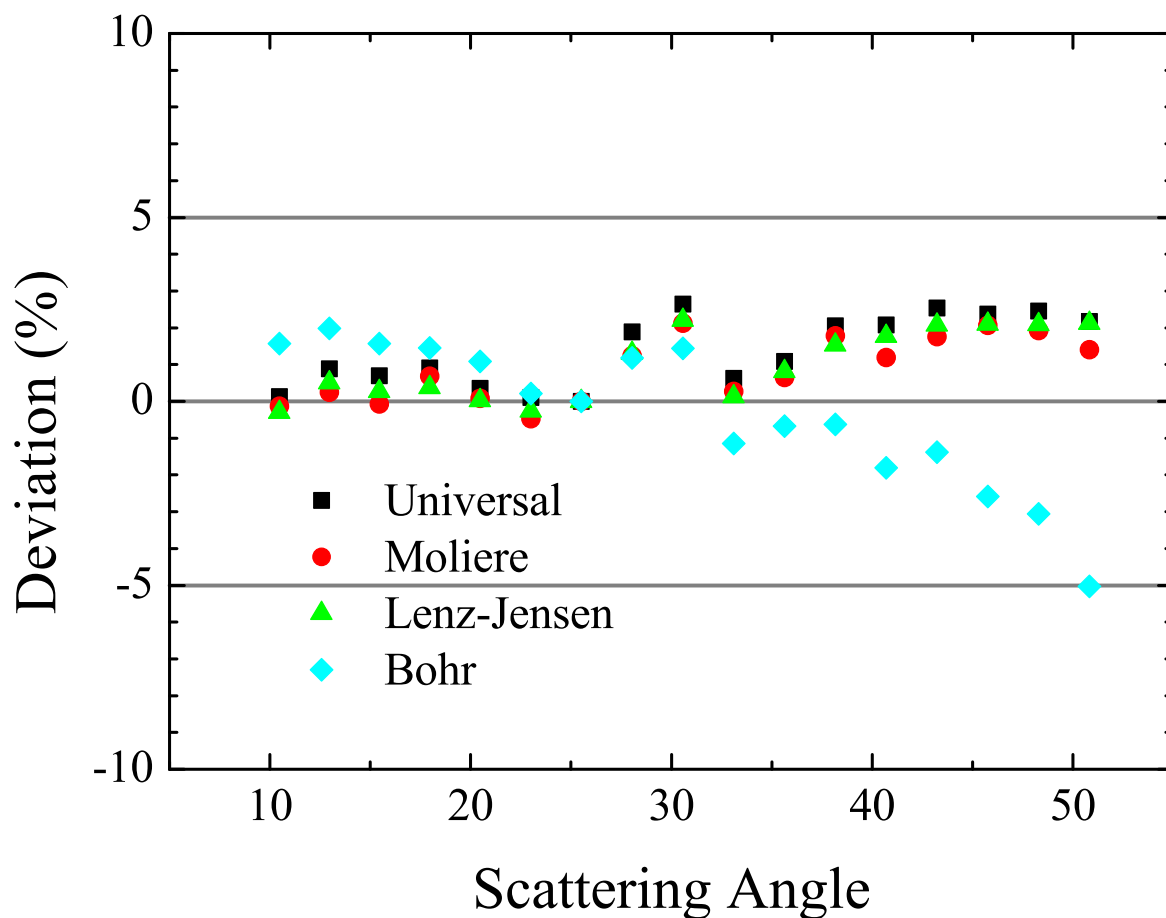


図 5.10 原子間ポテンシャル毎の計算結果のずれ

5.7 阻止断面積の決定

標的内で荷電粒子が受ける弾性散乱の回数は荷電粒子の透過距離が長ければ長いほど増加する．従って，標的透過後の荷電粒子の散乱角度分布は標的の直径によって大きく影響を受けることが分かる．5.4 節では，レーザー顕微鏡で測定した Al ワイヤーの直径 ($D = 25.3 \mu\text{m}$) を標的の直径として入力し，実験結果の再現を行った．しかし，この直径はあくまでもレーザー顕微鏡で測定した Al ワイヤーの位置の直径であり，実際に荷電粒子線を照射した位置の直径ではない．計算結果の散乱角度分布をよく見ると，50 mrad 付

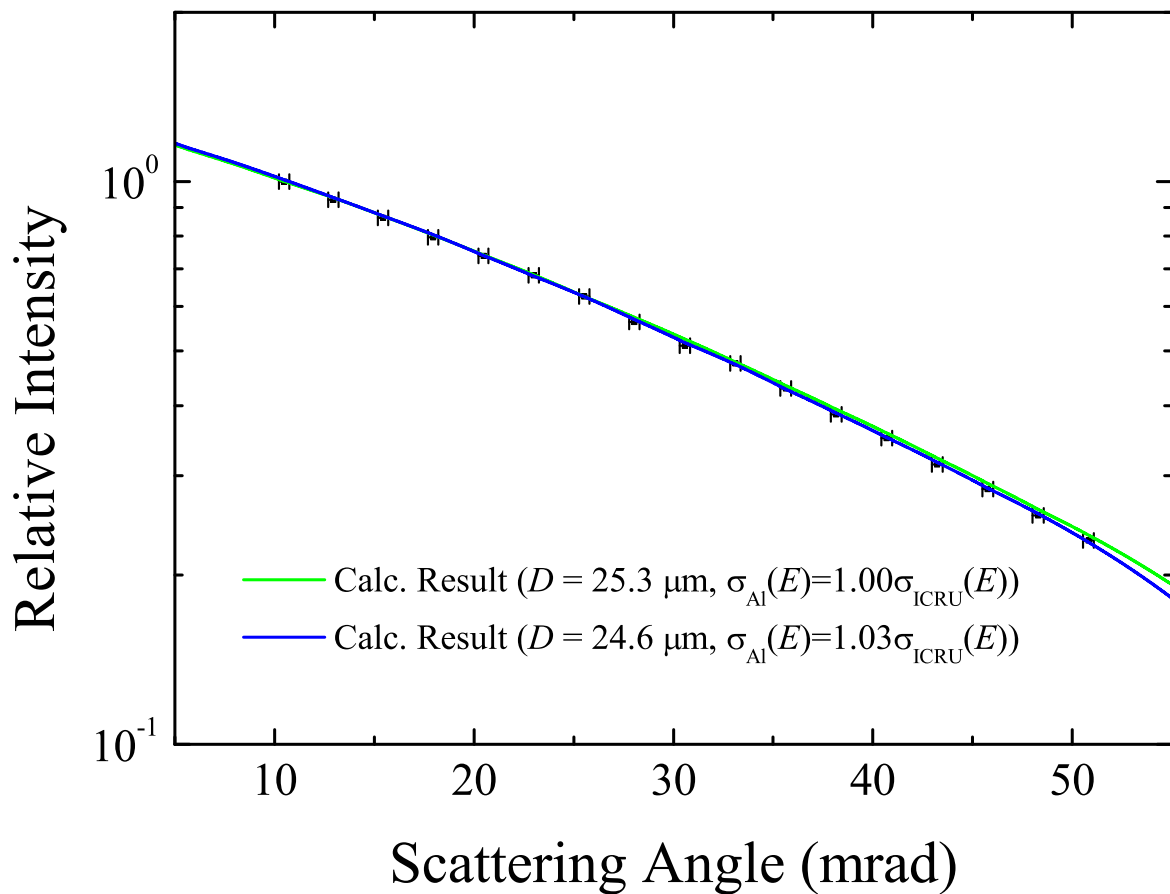


図 5.11 散乱角度分布の再現計算結果の比較

近では実験結果に対して、散乱角度のエラーバーのぎりぎりのところに計算結果がきており、実際の標的の直径が $25.3 \mu\text{m}$ とは限らないことを示唆している。そこで、Al 標的の阻止断面積 $\sigma_{\text{Al}}(E)$ および標的の直径 D をフィッティングパラメーターとして変化させ、再現計算の結果がどのように変化するかを比較した上で、実際の Al 標的の阻止断面積および標的の直径を求めることにした。なお、Al 標的の阻止断面積は $\sigma_{\text{Al}}(E) = \alpha\sigma_{\text{ICRU}}(E)$ として、ICRU49 の計算式で求めた阻止断面積の値を定数 α 倍した物を入力して計算を行った。

図 5.11 に標的の直径を $D = 25.3 \mu\text{m}$ 、 $D = 24.6 \mu\text{m}$ とした時の散乱角度分布の再現計算の結果を示す。それぞれの直径の値について、エネルギー分布を最も良く再現した阻止

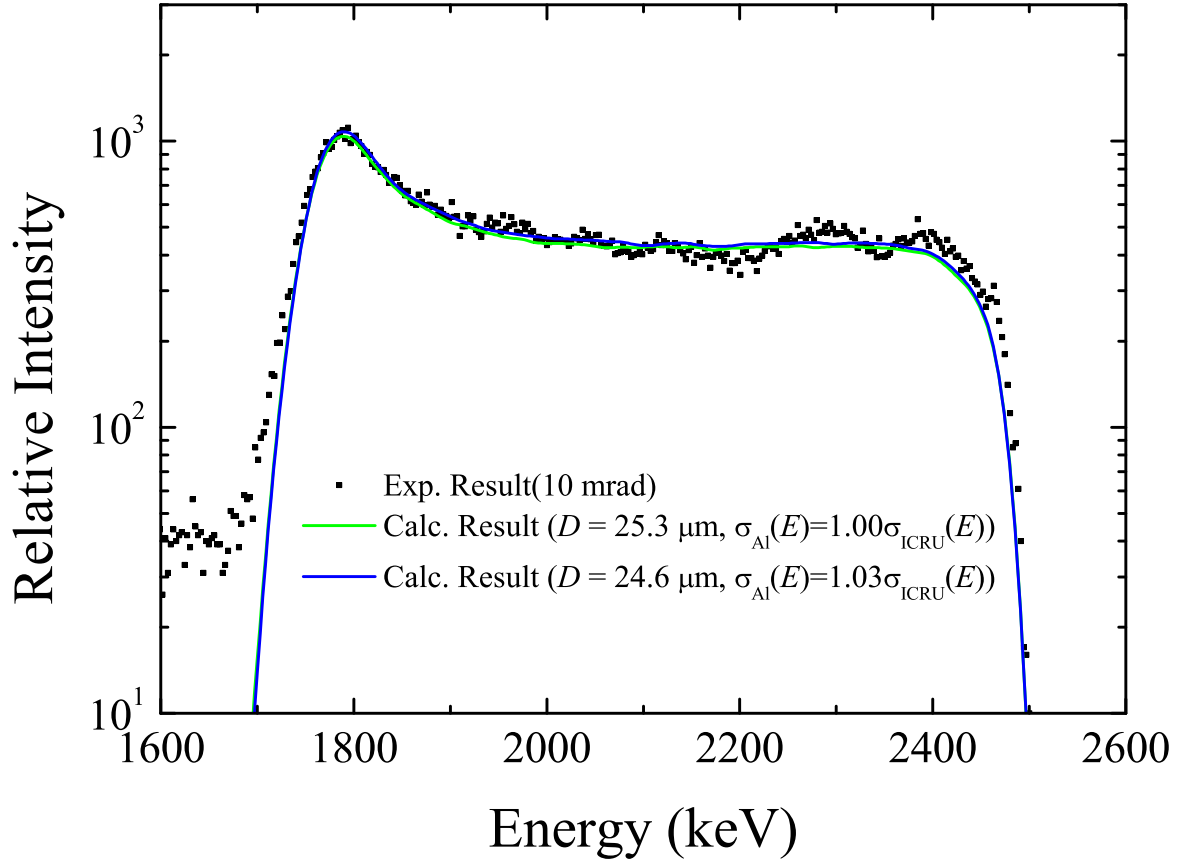


図 5.12 エネルギー分布の再現計算結果の比較

断面積の値は， $D = 25.3 \mu\text{m}$ の時は $\sigma_{\text{Al}}(E) = 1.00 \times \sigma_{\text{ICRU}}(E)$ ， $D = 24.6 \mu\text{m}$ の時は $\sigma_{\text{Al}}(E) = 1.03 \times \sigma_{\text{ICRU}}(E)$ であった．標的の直径をこれらの値以上，もしくは以下に設定すると，散乱角度分布のエラーバーから外れてしまい，実験結果を再現することはできなかった．

続いて，それぞれの場合のエネルギー分布の再現計算の結果を図 5.12 に示す．図から分かるように，二つのパターンの計算結果に顕著な差は見られず，どちらのパターンも実験結果のエネルギー分布を上手く再現することが分かった．

ここで，本測定法の不確かさについて考察する．エネルギー分布測定の不確かさについては，検出器の半値幅 $\Delta E_{\text{FWHM}} = 12.2 \text{ keV}$ を再現計算の中に入れており，図 5.12 で示した再現計算で得たエネルギー分布はエネルギー分布測定の不確かさまで考慮に入れてい

る．一方で，散乱角度のエラーバーである，検出器の位置決めの精度に起因する不確かさは再現計算に入れることはできないので，再現計算で決まる標的の直径，阻止断面積の値はこの散乱角度のエラーバーに相当する不確かさを持つことになる．

以上から，実験結果を再現することのできる阻止断面積，直径の最大，最小の値の平均を本研究の測定法で得られる標的の阻止断面積，直径の値とし，不確かさを最大，最小の値の幅とした．よって，この測定で得られた Al ワイヤー標的の直径は $24.95 \pm 0.35 \mu\text{m}$ であり，阻止断面積の値は ICRU 49 の阻止断面積の値の $+1.5 \pm 1.5 \%$ となり，非常によく一致することが分かった．

5.8 まとめ

直径 $25 \mu\text{m}$ の Al ワイヤー標的に 2.5 MeV H^+ を照射し，標的透過後の H^+ のエネルギー分布，散乱角度分布を測定した．得られたエネルギー分布は標的の断面が正円であることを強く反映しており，標的内での荷電粒子の散乱を考えないモデルで，およそそのエネルギー分布の概形を示すことができた．またこのモデルによって，エネルギー損失の大きさと，標的の直径によって，このエネルギー分布が大きく決定されることを示すことができた．

一方で，標的の中心部分を透過した荷電粒子に相当するピーク部分の強度は，散乱を考えないモデルで求めた計算結果に対して，実験の強度は低かった．この原因として，標的内で荷電粒子が多重散乱を受けていることが考えられた．実際に，標的透過後の散乱角度分布は，散乱角度の 4 乗に反比例する一回散乱の分布には従わず，なだらかに減少する多重散乱特有の分布を示した．

そこで，標的内での荷電粒子の多重散乱を考慮することで，実験結果を説明できることを確認するために，標的内での荷電粒子の弾性散乱を逐次計算するモンテカルロシミュレーションを GEANT4 を用いて製作し，実験結果の再現を行った．

再現計算の結果はエネルギー分布，散乱角度分布ともに実験結果と非常に良く一致し，標的内での荷電粒子がうけるエネルギー損失・散乱過程をうまく再現できることが分かっ

た．また，Bohr ポテンシャルの様に減衰の早い原子間ポテンシャルでは散乱角度分布を過小評価してしまうが，それ以外の，Universal，Molière，Lenz-Jensen ポテンシャルを使用すれば，散乱角度分布を上手く再現できることが分かり，それぞれのポテンシャル間に大きな差は見られないことが分かった．

最後に，再現計算で使用する標的の直径，阻止断面積をフィッティングパラメーターとして，実験結果を再現することのできる標的の直径，阻止断面積の範囲を求めた．その結果，標的の直径は $24.95 \pm 0.35 \mu\text{m}$ であり，阻止断面積の値は ICRU49 の値の $+1.5 \pm 1.5 \%$ であり，非常に良く一致することが分かった．

以上のまとめとして，標的透過後のエネルギー分布と散乱角度分布を測定した結果は，標的内での多重散乱を考慮した計算による再現結果は非常によく一致することが分かった．エネルギー分布と散乱角度分布は標的の直径と阻止断面積によって大きく決まるため，逆にエネルギー分布および散乱角度分布を再現する標的の直径と阻止断面積を再現計算によって求められることが分かった．

第 6 章

液体水標的透過後の 4.0 MeV He^{2+} の測定

真空中に液体分子線法を用いて導入した液体水標的に、4.0 MeV He^{2+} を照射し、標的透過後の He^{2+} のエネルギー分布および散乱角度分布を測定した。He に対する水の阻止断面積は RI 線源を用いた実験が数多く行われており、それらの結果と本研究で得られた阻止断面積との比較を行った。本章ではその結果と考察について記述する。

6.1 液体水標的

実験で使用した液体水標的には直径 20 μm のノズルから引き出した液体分子線を用いた。使用したノズルは武蔵エンジニアリング株式会社で購入した高精細ノズル FN-0.002N(直径 20 μm) を用いた。このノズル径を選択した理由としては、4.0 MeV He^{2+} の液体の水内における飛程が 27.1 μm しかないためである [12]。事前にノズルの径をレーザー顕微鏡で測定したところ、22 μm であった。真空中に導入した液体水標的は第 3 章で述べたように、導入した後に液体窒素トラップで凍結し、真空度を維持する仕組みとした。また、荷電粒子線はノズルの先端から 1 mm の位置に照射し、液体の流量は常に一定とした。なお、実験に使用した水は純度 99.9 % の蒸留水を用いた。

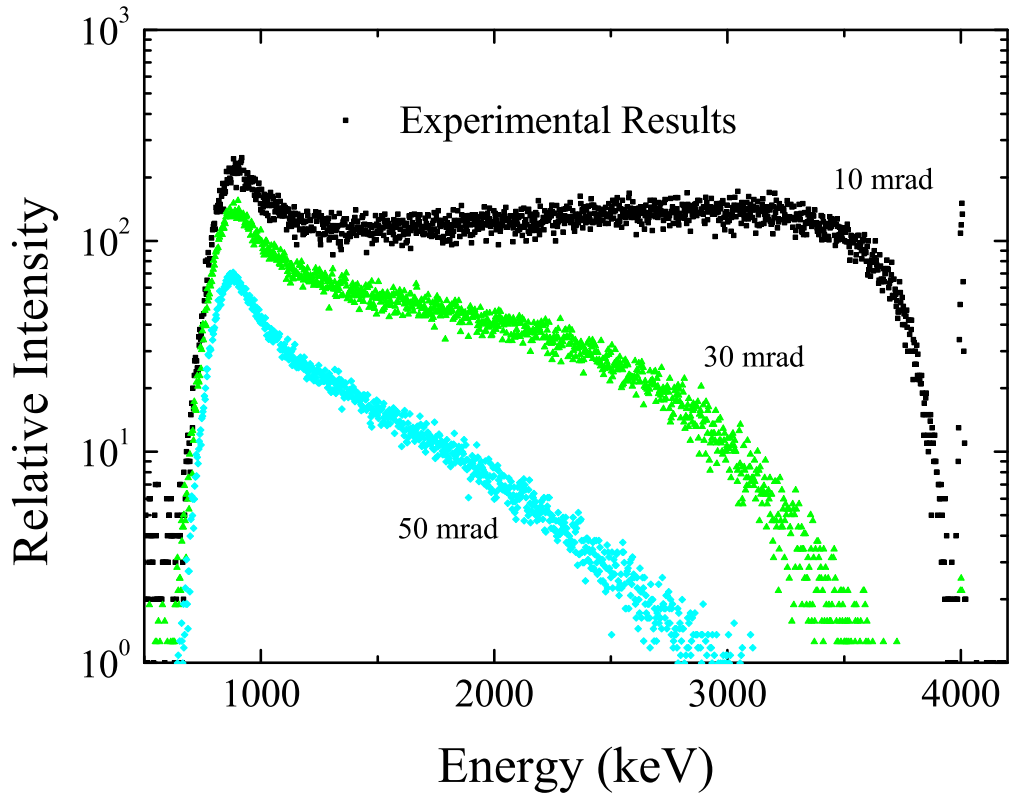


図 6.1 4.0 MeV He^{2+} の液体水標的透過後のエネルギー分布

6.2 標的透過後の He^{2+} のエネルギー分布

エネルギー分布の測定結果を図 6.1 に示す．Al ワイヤー標的の場合と同様に，散乱角度毎に異なるエネルギー分布を持ち，標的の中心を透過した部分相当するピークを 900 keV 付近に持つことが分かる．Al ワイヤー標的の場合と異なるのは，エネルギー分布の幅が非常に大きく，最大のエネルギー損失が 3100 keV となることであるが，幅が広がるだけで，全体としての傾向は一致していることが分かる．また，Al ワイヤー標的の場合に見られた，表面粗さに起因すると思われる不規則な凹凸は確認できなかった．このことから，液体標的の形状は円柱状をしていると考えて良い．

得られたエネルギー分布には 4.0 MeV にピークがあるが，このピークは液体標的を透

過しなかった入射荷電粒子線が検出器に入射したものである．この様な入射粒子が発生する原因としては以下の 2 つの理由が考えられる．まず，1 つめの理由としては 2D-スリットで散乱された荷電粒子の入射である．本研究では，荷電粒子線を 2D-スリットでコリメートしているが，荷電粒子線にスリットを当ててビームを切る以上，必ずスリット先端部分で散乱される荷電粒子が発生する．この様なビームは最下流に設置した 2D-スリットで可能な限り取り除いているが，完全に取り除くことは不可能であり，10 mrad の位置に検出器を構えると必ず検出される．また，もう一つの理由としては，液体標的周辺の蒸発した水分子によって散乱された荷電粒子線である．液体分子線を導入すると，衝突槽は非常に密度は低いものの蒸発した水分子で満たされるため，蒸発した水分子によって散乱される荷電粒子が生じる．Al ワイヤー標的の測定ではこの様な荷電粒子線の散乱はそれほど大きく検出されていないため，液体水分子線標的の測定においては，後者の理由が主要因と考えられる．ただ，液体分子線表面においても蒸発した水分子の密度は液体の 10^3 分の 1 以下である．実際に，全体の総カウント数において，このピークのカウント数が占める割合は 0.1 % 程度であるため，後で述べる散乱角度分布においても問題にならない．

ここで，阻止能について簡単な見積もりを行う．第 3 章での液体分子線の直径に関する見積もりから，液体標的の直径をノズルの径と同じ $22\ \mu\text{m}$ と仮定する．全体のエネルギー損失が 3100 keV であることから，He に対する液体水標的の阻止能は $141\ \text{keV}/\mu\text{m}$ となる．ICRU 49 のデータによれば，この 900 keV から 4000 keV の平均に相当する 2450 keV の He に相当する阻止能は $143.2\ \text{keV}/\mu\text{m}$ となる．この事実だけから考えると，液体水標的の阻止能は ICRU 49 の値より 1.4 % 小さい結果となり，ほぼ一致していることが分かる．第 3 章でも述べたように，液体分子線標的の径は液体の蒸発によってノズルの下流 1 mm 程度でノズル径より 1 ~ 2 % 細くなっていると考えられるので，そのことを考慮すれば阻止能の値は大きめの値として得られると考えられる．一方で，実際の液体分子線標的には動径方向の拡散によって太くなるという報告もなされており [20, 45]，液体分子線の径がノズル径よりも大きくなっていると考えれば，より ICRU49 の値に近づくことになる．いずれにせよ，液体分子線標的の径はノズルの径に対して数 % 程度のレベルで変化していることが予想されるため，今回のような数 % 以下のずれをここで議論

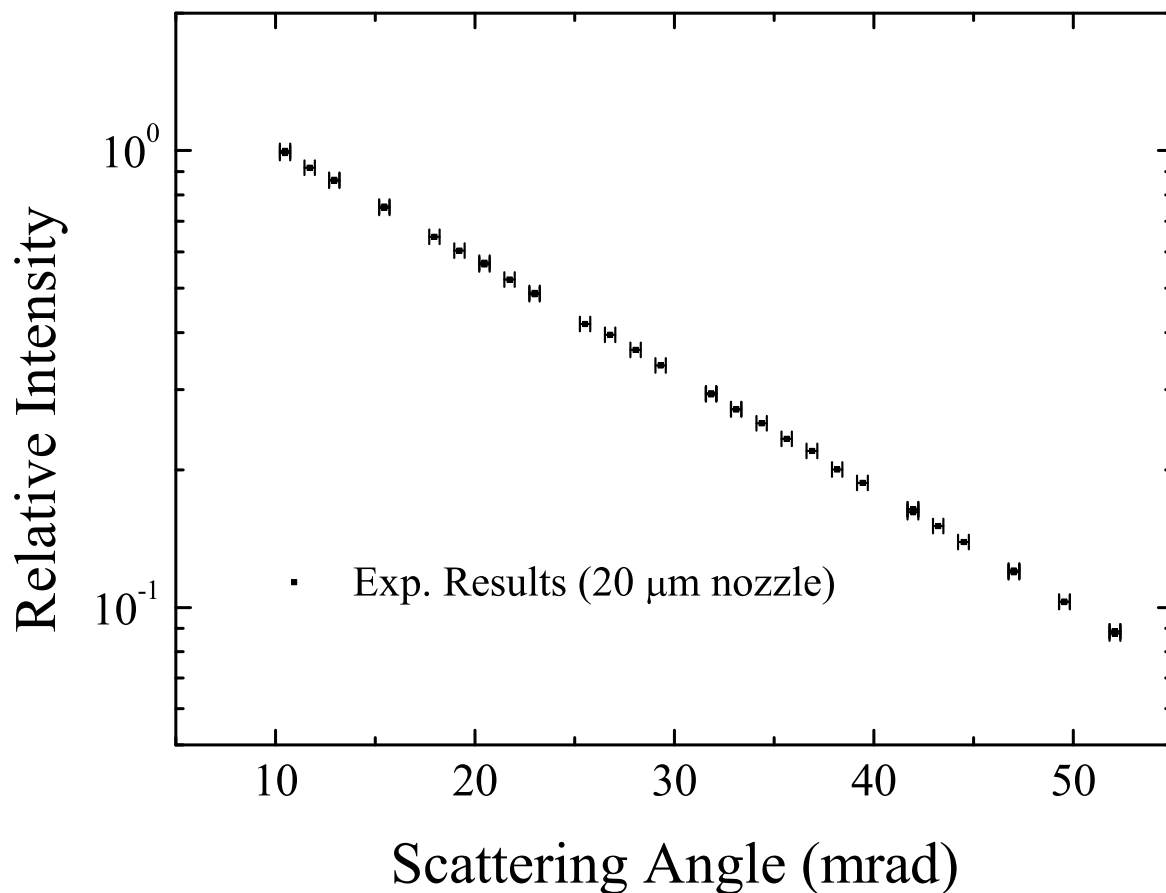


図 6.2 4.0 MeV He^{2+} の液体水標的透過後の散乱角度分布

することはできない。

6.3 標的透過後の He^{2+} の散乱角度分布

図 6.2 に液体水標的透過後の He^{2+} の散乱角度分布の測定結果を示す。図で横軸は散乱角度，縦軸は相対強度である。相対強度は上流 SSD の総カウント数と下流 SSD の総カウント数の比を 10 mrad の位置で 1 となるように規格化してプロットした。なお， x 軸のエラーバーは散乱角度測定における散乱角度の不確かさである。

図から分かるように，Al ワイヤー標的の場合と同様に液体水標的でも同じような散乱角度分布を得た。前節で示したエネルギー分布は第 5 章で測定した Al ワイヤー標的透過

項目	H	O	H ₂ O
原子番号	1.0	8.0	3.33
原子量	1.00794	15.9994	18.01528
平均励起エネルギー	19.2 eV	106 eV	75.0 eV

表 6.1 水の構成原子の原子番号と原子量，平均励起エネルギー．原子番号，原子量は NIST の周期表から引用 [56]．H，O の平均励起エネルギーの値は ICRU 37 から液体，固体化合物中の H，O 原子用の平均励起エネルギーを表示している [57]．

後の H^+ とのエネルギー分布の概形と非常によく似ていることから，液体水標的の内において He^{2+} も多重散乱を受けていることがよく分かる．ただ，Al ワイヤー標的よりも標的径が小さいため，50 mrad 付近の大角側での相対強度が Al ワイヤー標的の場合より小さくなっている．

6.4 4.0 MeV He^{2+} に対する液体の水の阻止断面積

実験結果に対してモンテカルロシミュレーションによる再現計算を行い， He^{2+} に対する液体の水の阻止断面積と液体水標的の直径を求めた．モンテカルロシミュレーションを行うには，液体水標的に関する情報を与える必要がある．液体水標的の情報として，水を構成する H 原子や O 原子の原子番号，原子量の情報は NIST[56] で提供されている周期表の値をもとに設定した．また，標的の密度は第 3 章で行った計算結果より，ノズルの先端から 1 mm 下流の液体水標的の温度を 0 °C とし，密度を 0.999836 g/cm³ とした．また，エネルギーストラグリング計算用のパラメーターとして，液体水標的の平均励起エネルギーに ICRU 49 の値 $I_{\text{ICRU}} = 75.0$ eV を入力した [12]．なお，阻止断面積自体の計算にはこの ICRU 49 の (4.5) 式を使用しており，この平均励起エネルギーの値の影響は受けない．表 6.1 に計算で使用した主なパラメーターを示す．このようなパラメーターを用いて，Al ワイヤーの場合と同様に，エネルギー分布および散乱角度分布をの両方を再現できる液体水標的の直径と，阻止断面積を求めた．

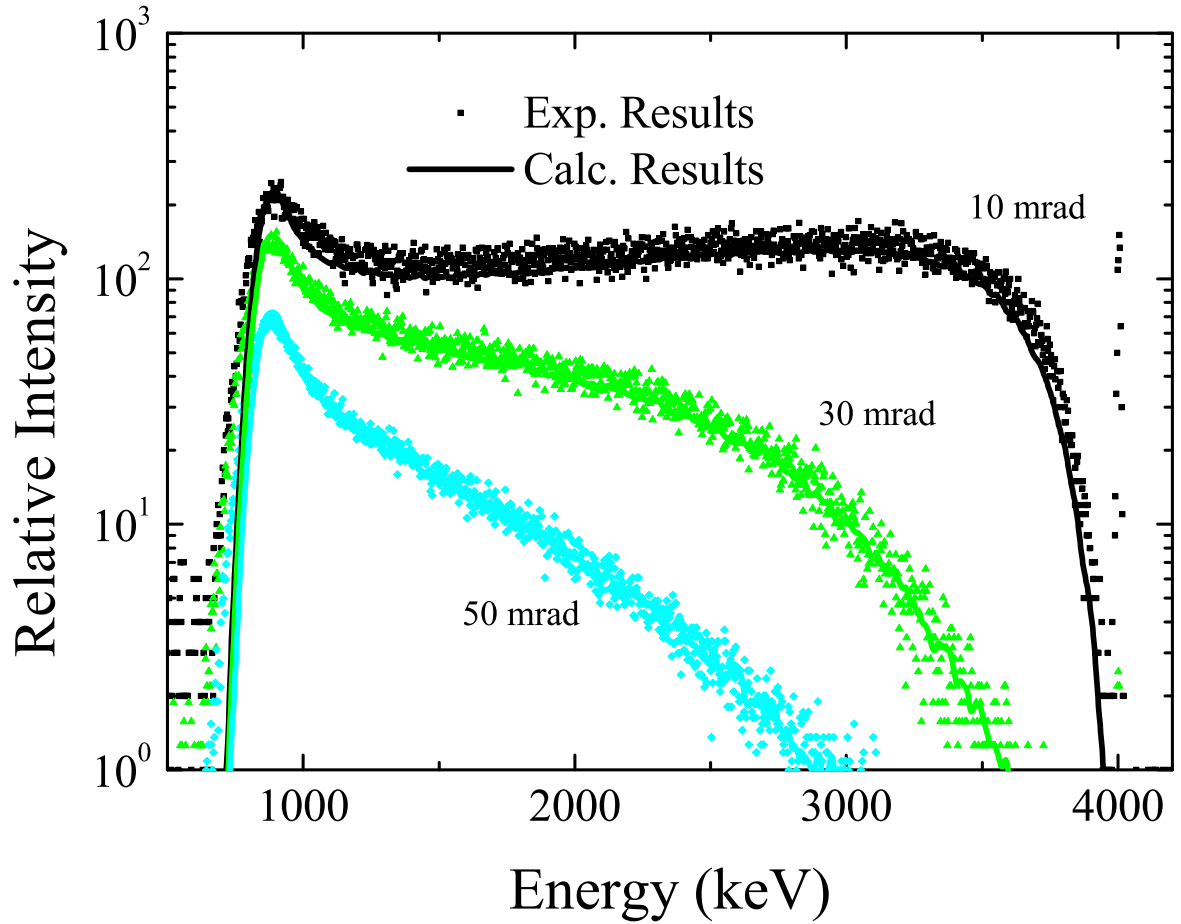


図 6.3 4.0 MeV He^{2+} の液体水標的透過後のエネルギー分布再現計算結果

モンテカルロシミュレーションによる再現計算の結果を図 6.3 に示す．図から分かるように，Al ワイヤー標的の場合と同様，モンテカルロシミュレーションによって得られたエネルギー分布は実験結果のエネルギー分布と非常に良く一致しており，本研究で用いたモンテカルロシミュレーションが液体水標的に対しても有効であることが確認できた．

次に，散乱角度分布の再現計算結果を図 6.4 に示す．散乱角度分布についてもエネルギー分布と同様に，実験結果を再現することができた．図 6.3 および図 6.4 で示した再現計算結果が最もよく実験結果を再現した結果であり，この時の液体水標的の直径は $D = 21.0 \pm 0.4 \mu\text{m}$ であった．液体水標的の阻止断面積については，ICRU 49 の阻止断面積の値よりも，実際の阻止断面積の値が $1 \pm 2 \%$ 大きいという計算結果となった．な

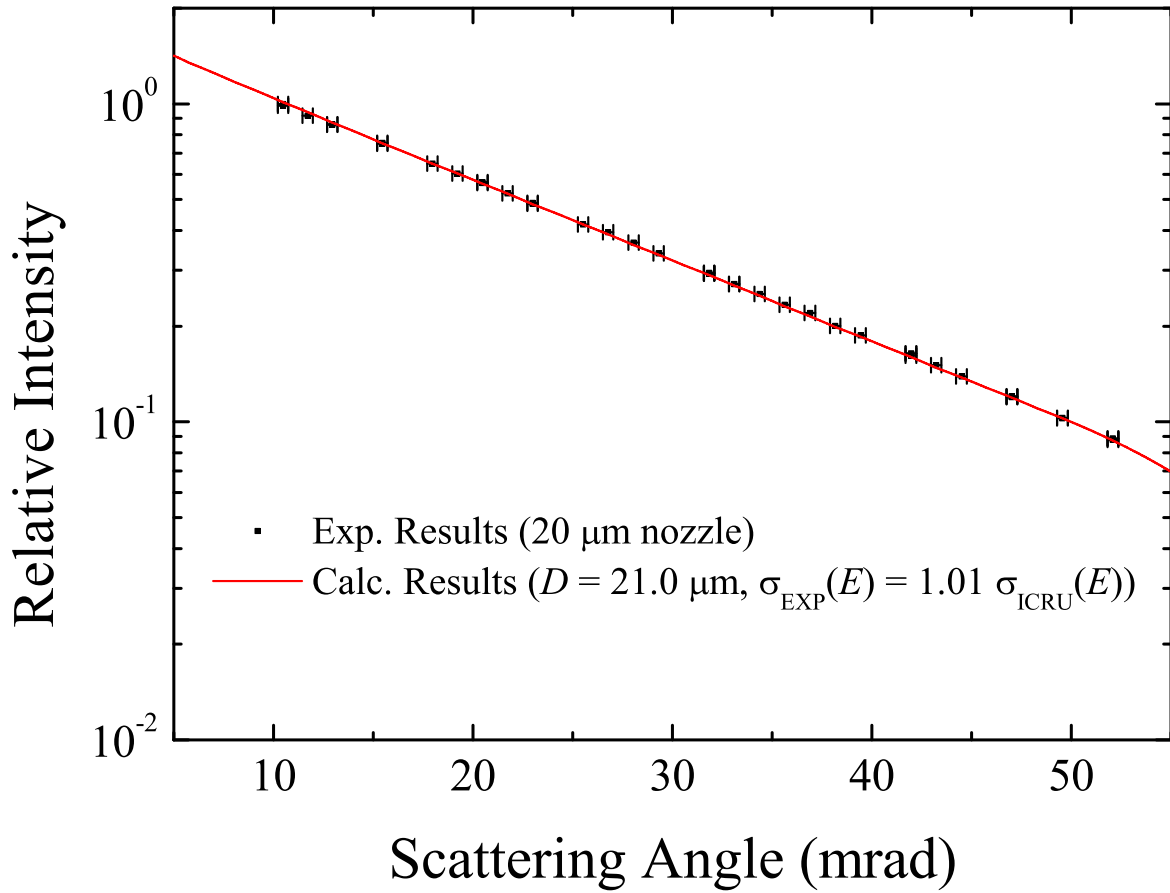


図 6.4 4.0 MeV He^{2+} の液体水標的の透過後の散乱角度分布再現計算結果

お、不確かさについては Al ワイヤー標的の場合と同様の手続きで決めている。

以上の結果から、本研究で得られた 0.9 ~ 4.0 MeV の He^{2+} に対する液体の水の阻止断面積は 0.9 ~ 4.0 MeV の領域における ICRU 49 の阻止断面積の分布に対して、1 % 程度大きいという結果となった。ここで、この値について、過去の実験データとの比較を図 6.5 を用いて行う。図をみると、過去の実験データに対して本研究で得られた阻止断面積の値はおおむね一致していることがよく分かる。図から分かるように、ICRU 49 や、SRIM 2008 の値は過去に行われた実験データ [5, 58, 59, 6, 60] をもとに決定されており、それぞれの過去データの不確かさと本研究における測定の不確かさを考慮すれば、今回の 1 % のずれは十分に許容される範囲である。

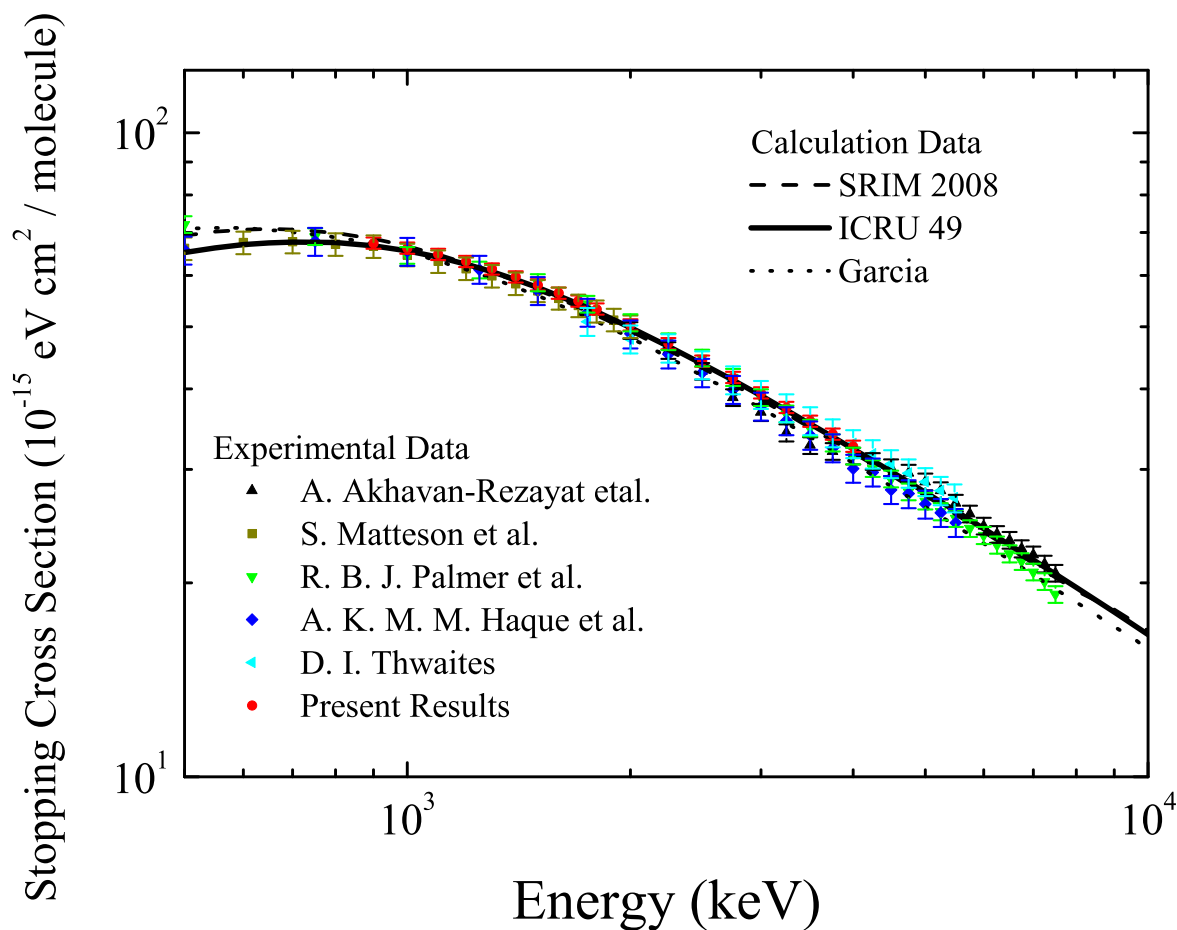


図 6.5 He に対する液体の水の阻止断面積．シンボルは実験データ (Akhavan-Rezayat[5], Matterson[58], Palmer[59], Haque[6], Thwaites[60])．破線は半経験的計算コード SRIM 2008[13]．実線は基準データとした阻止断面積データ ICRU 49[12]．点線は Gracia らによる誘電応答関数を用いた理論計算の結果 [61]．

ところで，図 6.3 において，標的の直径部分を透過した 900 keV 付近のピークは，大角側，すなわち 50 mrad の結果において，測定結果のピーク位置が低エネルギー側にわずかにずれていくことが分かる．計算内では，標的内での散乱による透過距離の変化まで考慮に入れており，このことは標的内で強く散乱を受けた荷電粒子にとっての標的の阻止能と，弱い散乱しか受けなかった荷電粒子にとっての阻止能が異なることを示しており，強い散乱を受ける荷電粒子ほど阻止能が大きくなっていることが分かる．表 6.2 に各散乱

散乱角度	実験結果の最大エネルギー損失	10 mrad とのずれ
10 mrad	3109 keV	
30 mrad	3117 keV	0.26 %
50 mrad	3126 keV	0.54 %

表 6.2 散乱角度毎の最大エネルギー損失の実験結果のずれ

角度における最大エネルギー損失についての比較を示す．表から分かるように，散乱角度が大きくなるにつれて，少しずつエネルギー損失が大きくなる傾向が分かる．ただし，10 mrad と 30 mrad の間のずれは MCA のチャンネル数にして 3 チャンネル分にすぎず，あまり有意な差とは言えない．とはいえ，散乱角度に応じて，荷電粒子が実際に感じる阻止能が違っていることを示している．

このような結果は，次のように考えることで，定性的にはあるが解釈することができる．10 mrad に散乱された荷電粒子に比べ，50 mrad に散乱された荷電粒子はそれだけ標的内で強く散乱される衝突を繰り返してきたと考えられる．第 2 章で考えたとおり，荷電粒子が強くされるには小さい衝突径数で標的原子に衝突する必要がある．50 mrad に散乱された荷電粒子は小さい衝突径数の衝突を繰り返してきたことになる．図 6.6 を使って，衝突径数の小さい衝突と大きい衝突について考えてみる．図において，灰色の部分が標的原子の電子雲を示す．これまでの議論から，衝突径数が大きい場合，荷電粒子は電子雲をかすめるように入射し，ほとんど散乱を受けない．逆に，衝突径数が小さい場合，荷電粒子は電子雲に対して深く進入し，標的原子核の電荷を強く感じて，大きく散乱される．このことから，衝突径数が大きい場合に比べ，衝突径数が小さい場合は標的原子がもつ電子雲を透過する距離が長くなり，従って一回の衝突で失うエネルギー損失が大きくなることが分かる．このような小さい衝突径数の衝突を繰り返してきた荷電粒子は，結果として同じ距離を透過してきた荷電粒子に比べて，エネルギー損失の量，すなわち阻止能が大きくなる．このような阻止能の散乱角依存性は坂本らによって詳細に調べられ，報告されている [62]．坂本らによれば，散乱角度によって阻止能が変わる効果は非常に小さい．この

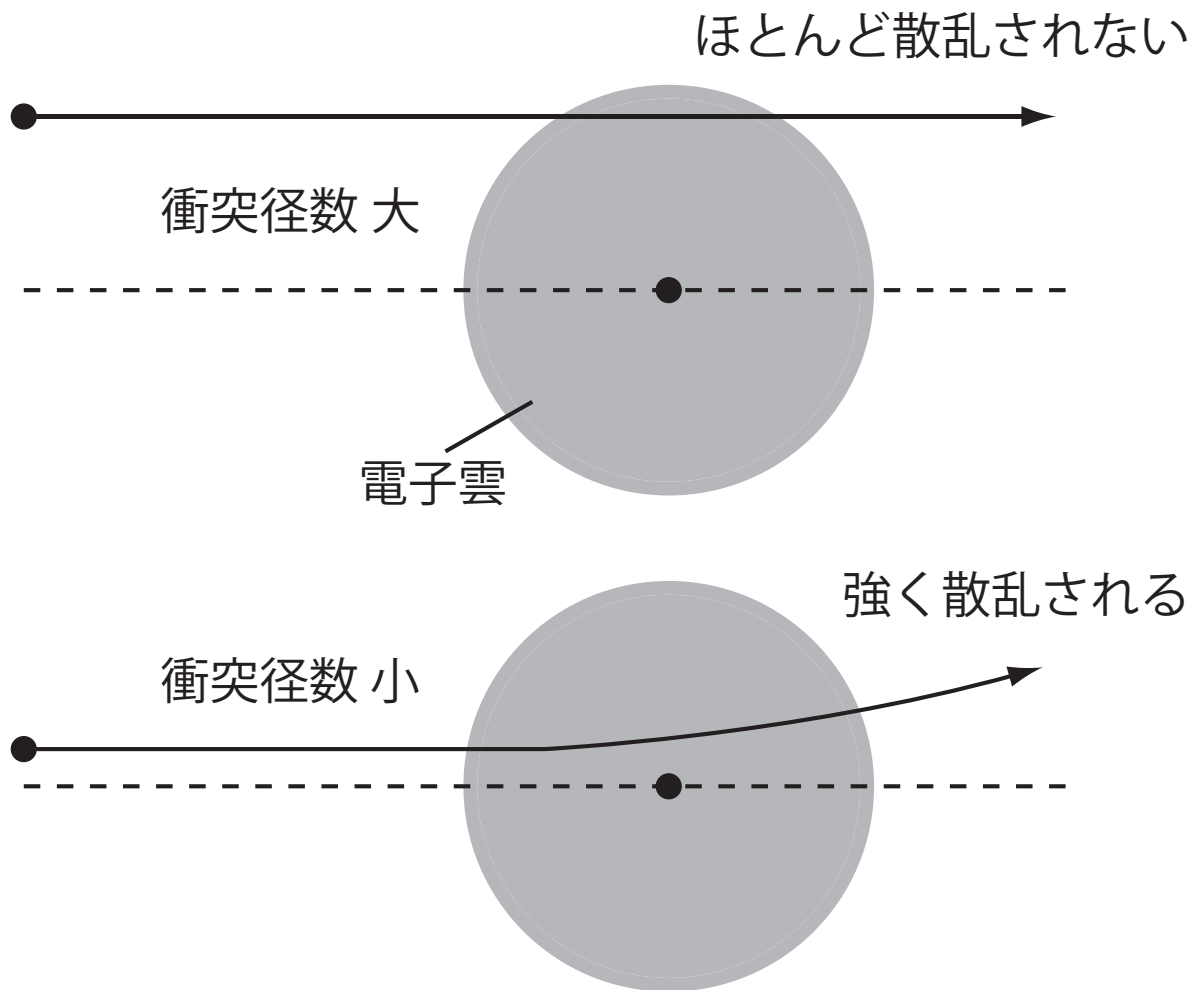


図 6.6 阻止能の衝突径数依存性．衝突径数が多い衝突と小さい衝突の比較．衝突径数の小さい衝突の方が標的原子の電子雲を透過する距離が長いことが分かる．

ずれば 1 回の散乱あたりの散乱角が大きくなるにつれて大きくなるが、1 % 程度になった後はそれ以上変化しないことが知られている．いずれにせよ、この効果は本研究の不確かさ以上になることはない．

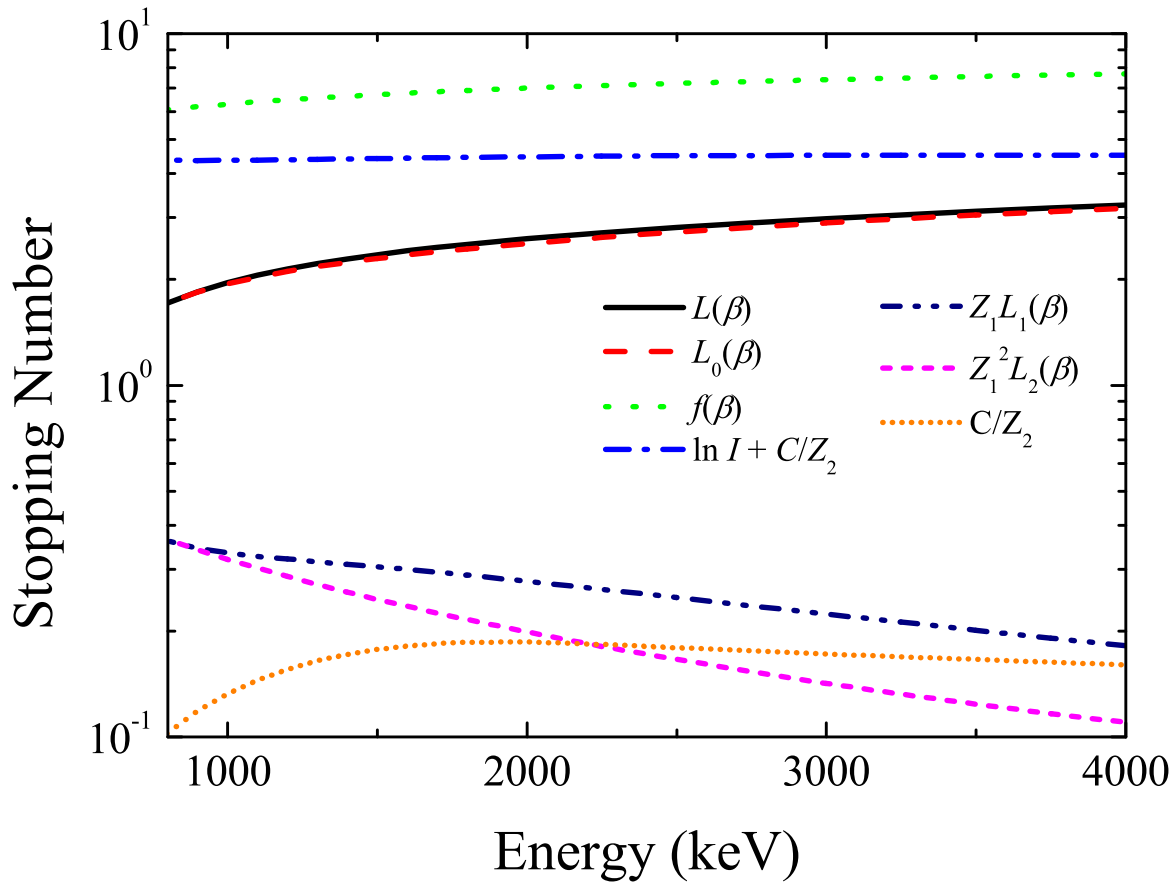


図 6.7 He に対する水の阻止断面積における各補正項の値

6.5 平均励起エネルギー

最後に，He に対する水の阻止断面積の測定結果をもとに，平均励起エネルギーなどのそれぞれの項の値の導出を行った．結果を図 6.7 に示す．図の各補正項の値は以下の様な手順で求めた．まず，あるエネルギー E の He に対する水の阻止断面積の値を $\epsilon(E)$ とすると，

$$\epsilon(E) = \frac{n\kappa Z_{\text{eff}}^2 \overline{Z_2}}{\beta} L(\beta) \quad (6.1)$$

i	C_i
0	0.2865
1	0.1266
2	0.001429
3	0.02402
4	0.01135
5	0.001475

表 6.3 He の有効電荷計算のパラメーター [23]

であるから，まず Stopping Number($L(\beta)$) を，

$$L(\beta) = \frac{\beta^2}{n\kappa Z_{\text{eff}}^2 \overline{Z}_2} \epsilon(E) \quad (6.2)$$

とした．ここで， n は水の構成原子数 ($n = 3$)， \overline{Z}_2 は水の有効原子番号 ($\overline{Z}_2 = (2 \times 1 + 8)/3 \approx 3.33$) である． Z_{eff} は He の有効電荷 (Effective Charge) であり，Ziegler が提案した次の式を用いて計算した [23]．

$$Z_{\text{eff}}^2 = \gamma^2 Z_{\text{He}}^2, \quad \gamma^2 = 1 - \exp \left[- \sum_{i=0}^5 C_i \left(\ln \frac{E}{A_{\text{He}}} \right)^i \right] \quad (6.3)$$

ここで， Z_{He} ， A_{He} はそれぞれ He の原子番号，原子量である． C_i はパラメーターで，表 6.3 に示す．次に，Barkas 補正項，Bloch 補正項については，第 2 章で述べた式でそれぞれ計算し，Primary Stopping Number $L_0(\beta)$ を求める．

$$L_0(\beta) = L(\beta) - Z_{\text{eff}} L_1(\beta) - Z_{\text{eff}}^2 L_2(\beta) \quad (6.4)$$

今回測定した，0.9 ～ 4.0 MeV の領域では，Density Effect などの補正項は非常に小さいので，無視できるので，最終的に次の式から，平均励起エネルギー I を求めることができる．

$$\ln I = f(\beta) - \frac{\overline{C}}{\overline{Z}_2} - L_0(\beta) \quad (6.5)$$

本研究では，殻補正項 C/Z については Bichsel の方法を使用し，特に O の殻補正項については，Khandelwal の計算値の表から殻補正項を求めた [30]．

最終的に，He に対する水の阻止断面積の測定結果から得られた平均励起エネルギーは $I = 72.4 \pm 4.4$ eV であった．この値は得られた各エネルギーの He に対する阻止断面積について，平均励起エネルギーを計算し，平均を取ったものである．不確かさについては標準偏差 (1σ) の値を示している．今回得られた平均励起エネルギーは ICRU 49 レポートの値 ($I_{\text{ICRU}} = 75.0$ eV) よりも不確かさの範囲内で小さい結果となった．また，表 6.1 に示した平均励起エネルギーから算出した平均励起エネルギー，

$$\ln I = \frac{2 \times Z_{\text{H}} \ln I_{\text{H}} + 1 \times Z_{\text{O}} \ln I_{\text{O}}}{3 * \overline{Z_2}} \quad \therefore I_{\text{Calc}} = 75.3 \text{ eV} \quad (6.6)$$

に対しても小さい値である．今回の計算では，ICRU 49 の値と比較するために，計算方法のパラメーターを ICRU 49 と同じにして計算を行っている．実験で得られた阻止断面積が ICRU 49 の阻止断面積の値よりも大きい値となっているため，平均励起エネルギーが小さい値となるのは当然の結果と言える．ところで，図 6.7 を見ると分かるように，今回のエネルギー領域において，もっとも寄与の大きい補正項は Barkas 補正項である．Barkas 補正項には計算で使用するパラメーターの数が多い．特に， $F(b/x_c^{1/2})$ の計算で使用する b の値は実験値を再現するように調整される値である．そこで，ICRU 49 の値で推奨されている $b = 1.8$ ではなく，Ashley が提案した $b = \eta_0 \chi (1 + 6.02 Z_2^{-1.19})$ を用いて計算を行ってみた [31]．なお，Ashley によれば $\eta_0 \chi \approx 0.8$ である．この計算法は GEANT4 などで Bethe-Bloch の阻止能公式を用いて阻止断面積を求める際の計算法として使用されている．この計算法で Barkas 補正項を計算し直したところ，平均励起エネルギーの値は $I' = 82.4 \pm 3.1$ eV となり，ICRU 49 の値と比べてかなり大きい結果となった．Ashley の計算法以外の Barkas 効果の計算法として，Ziegler の提案している Z_2 依存性を考慮しない Barkas 補正項の計算式 [36] についても試してみた．Zigler の計算法を用いると，平均励起エネルギーは 77.5 ± 5.1 eV となった．この値は SRIM が採用している水の平均励起エネルギー 69.7 eV と比べてかなり大きい結果となった [13, 63]．ここまで Barkas 補正項について計算法を変えて比較を行ってきたが，平均励起エネルギーにつ

いてはその他の各補正項の計算法によっても値が大きく変化するものである．また，実験で得られる平均励起エネルギーの値は本研究の場合と同様に 5% 程度の不確かさを持っている例がほとんどである．水の平均励起エネルギーについては，光学的手法や，高エネルギーの陽子線を用いた実験などによっても計算されており，最近に出された ICRU 73 では，液体の水の平均励起エネルギーとして 78.0 eV が採用されている [64]．

6.6 まとめ

直径 22 μm のノズルから引き出した液体水分子線標的に 4.0 MeV He^{2+} を照射し，標的透過後の He^{2+} のエネルギー分布，散乱角度分布を測定した．得られたエネルギー分布は液体標的が Al ワイヤー標的と同じ正円を断面に持つ円柱状をしていることをよく反映した結果となった．また，エネルギー分布と散乱角度分布から，標的内で荷電粒子が多重散乱を受けていることが分かった．

Al ワイヤー標的の場合と同様に，モンテカルロシミュレーションによる実験結果の再現計算を行い，液体標的の直径と He^{2+} に対する液体の水の阻止断面積を求めた．その結果，液体標的の直径は $21.0 \pm 0.4 \mu\text{m}$ であり，阻止断面積の値は ICRU49 の値と非常に良く一致した．この結果は，過去の α 線源を用いた測定結果 [5, 58, 59, 6, 60] ともよく一致し，本研究の手法で液体水標的の阻止断面積を求められることが分かった．

また，得られたエネルギー分布において，10 mrad と 50 mrad に散乱された荷電粒子のエネルギー分布について，標的の中止部分を透過した粒子に相当する最大エネルギーの損失のピーク位置がずれることが分かった．このことは，阻止能の散乱角依存性を反映しており，衝突径数の違いから説明することができる．しかし，この効果は非常に小さく，本研究における阻止断面積決定において，不確かさ以上になることはない．

測定で得られた阻止断面積をもとに，水の平均励起エネルギーを計算によって求めた．その結果，ICRU 49 の計算法によって求めた水の平均励起エネルギーは $72.4 \pm 4.4 \text{ eV}$ となり，ICRU 49 の推奨する値 75.0 eV に比べて小さい値となった．一方で，Ziegler の提案する Barkas 効果の計算法を用いると，SRIM で使用されている平均励起エネルギーの

値 69.7 eV よりも大きい, 77.5 ± 5.1 eV となった.

まとめとして, 衝突槽に液体分子線法を用いて液体の水を標的として導入し, 照射した荷電粒子線の標的透過後のエネルギー分布, 散乱角度分布測定することが出来た. さらに, 得られた測定結果について, モンテカルロシミュレーションによる再現計算を行い, 阻止断面積を求められることが分かった.

第 7 章

液体水標的透過後の H^+ の測定

本研究の最大の目的である陽子に対する液体の水の阻止断面積を求めるため，真空中に導入した液体水標的に加速器から引き出した $0.9 \sim 2.0 \text{ MeV}$ の陽子を照射した． MeV エネルギー領域の陽子に対する液体の水の阻止断面積測定は世界初の試みであり，この章ではその結果と考察について記述する．

7.1 液体水標的

実験で使用した液体水標的は第 6 章で述べた物と同じ物であるが，入射する陽子線のエネルギーに応じて液体分子線を噴射するノズルの直径を変更した．特に，入射粒子のエネルギー 2.0 MeV の場合は，エネルギー損失の量や散乱角度分布の広がりが小さくなるため，一回の測定にかかる時間と，測定できるエネルギー分布が限定されてしまう．そのため，直径 $50 \mu\text{m}$ のノズルから引き出した液体水標的を用いて実験を行っている．

7.2 実験・計算結果

図 7.1 に本研究で得られた典型的な液体水標的透過後の H^+ のエネルギー分布を示す．この測定の液体水標的は直径 $20 \mu\text{m}$ のノズルから引き出した物であるが， H^+ に対する水の阻止断面積は 1.0 MeV 以下のエネルギー領域で極大を迎えるため， Al 標的の場合よ

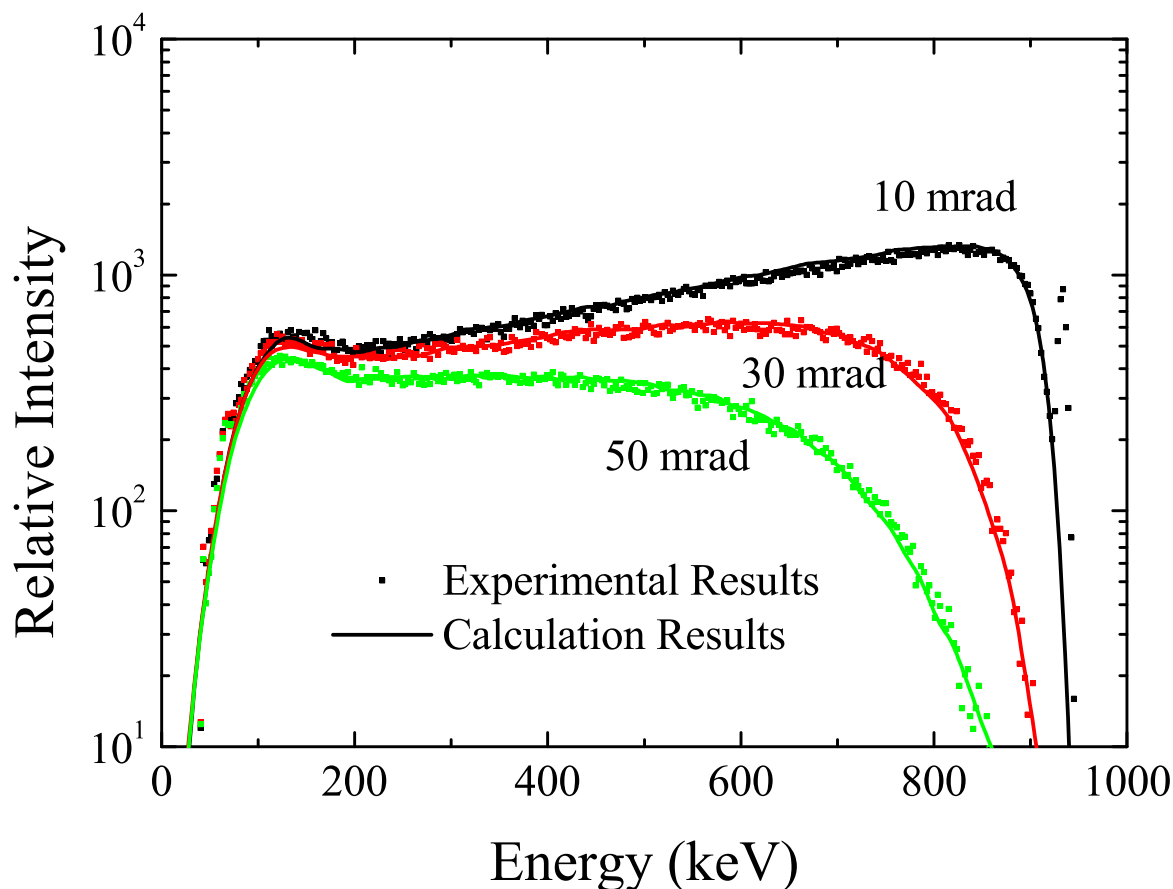


図 7.1 934 keV H^+ の液体水標的透過後のエネルギー分布

りもエネルギー損失の量が多いことが分かる．さらに，1.0 MeV 以下のエネルギー領域では散乱断面積が大きくなるため，50 mrad でも標的をかすめるように入射した荷電粒子が多く散乱され，測定されており，Al ワイヤー標的の場合や，He を照射した場合の測定結果の分布とかなり分布の概形が異なっている．

続いて，図 7.2 には標的透過後の 934 keV H^+ の散乱角度分布を示す．散乱角度分布については，液体水標的内において陽子が多重散乱を受けていることを強く反映した分布が得られた．50 mrad の位置での相対強度は He を照射した場合の相対強度の 3 倍以上であり，先ほどのエネルギー分布において，50 mrad の位置でも陽子が強く散乱されて検出されている事実を裏付けている．

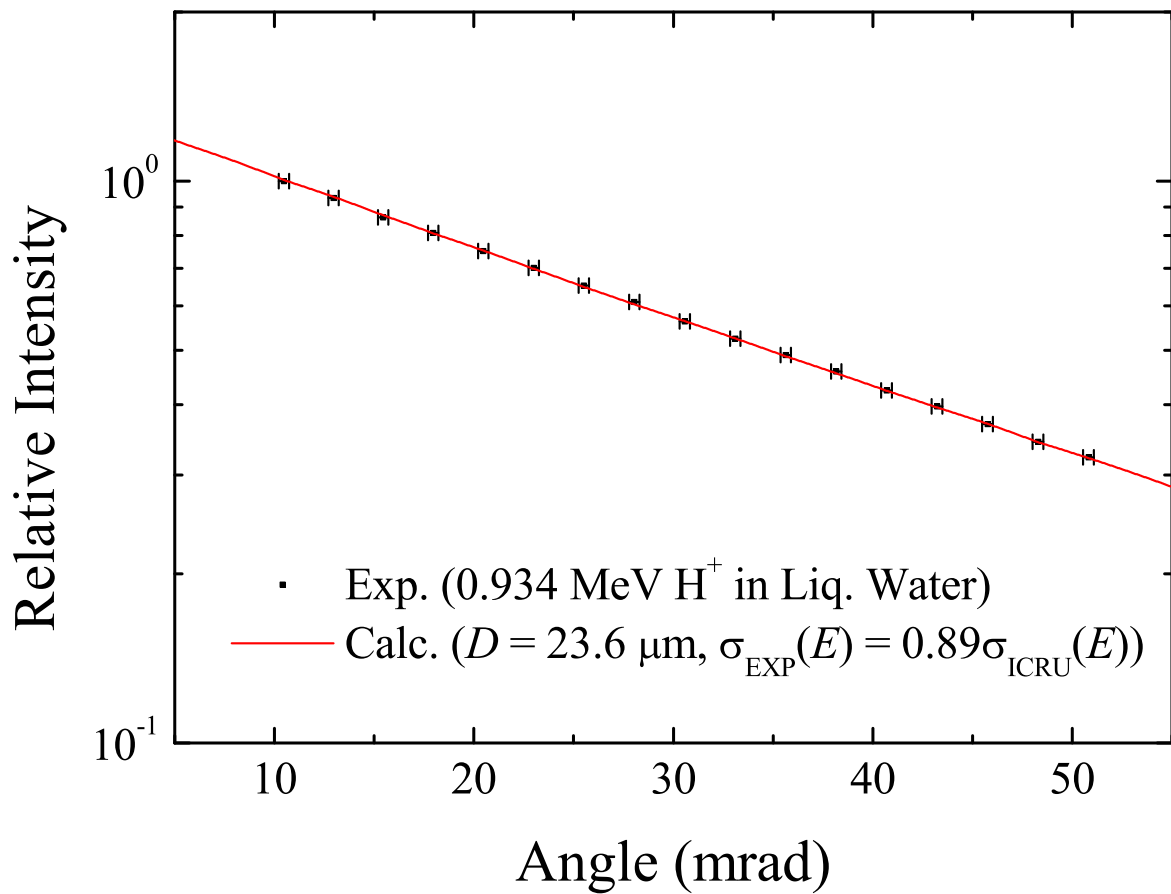


図 7.2 934 keV H^+ の液体水標的透過後の散乱角度分布

図 7.1, 7.2 には再現計算の結果も示している．図から分かるように，再現計算の結果と実験値は非常に良く一致しており，陽子を液体水標的の内に入射させた場合でも，多重散乱を考慮することで実験結果を上手く説明することができることを示している．なお，再現計算の結果，934 keV の陽子線を入射させた場合，陽子に対する液体の水の阻止断面積は ICRU 49 の値に対して， $11 \pm 2 \%$ 小さいことが分かった．同様にして，その他のエネルギーの陽子や直径の異なる液体分子線を用いて，阻止断面積を測定したところ，表 7.1 の様になった．結果を見ると，実際の液体の水の阻止断面積は (4.3) 式の ICRU 49 の阻止断面積の計算法による計算値よりも 10 ～ 15 % 程度小さいことが分かる．得られた結果を図 7.3 にプロットし，他の阻止断面積計算コードの値や同じ凝縮体の水である氷の阻

入射エネルギー [keV]	エネルギー分布の範囲 [keV]	$\sigma_{Exp}/\sigma_{ICRU}$ [%]
934	130 ~ 934	89 ± 2.0
1000	300 ~ 1000	87 ± 2.0
1620	300 ~ 1620	85 ± 2.0
2000	1100 ~ 2000	84 ± 2.0

表 7.1 陽子に対する液体の水の阻止断面積の再現計算結果． $\sigma_{Exp}/\sigma_{ICRU}$ は ICRU 49 の計算式 (4.3) で求めた阻止断面積の値と，計算の結果得られた阻止断面積の値の比．

阻止断面積の値と比較した．なお，MeV エネルギー領域の陽子に対する液体の水の阻止断面積を測定した例は本研究が世界初である．図を見ると，本研究で得られた結果は ICRU 49 のよりも小さいことが分かる．しかし，0.5 ~ 1.0 MeV 付近では半経験的阻止断面積計算コード SRIM 2008[13] の値と良く一致している．また，誘電応答関数を用いて阻止断面積を求めている Emfietzoglou, Garcia らの値と非常に良く一致している [65, 61]．特に Emfietzoglou の計算した値とは 200 ~ 1000 keV の付近でほぼ同じ値となった．

本研究で得られた結果に対して，ICRU 49 の阻止断面積の計算式の形で，フィッティングを行った．なお、フィッティングパラメーターの初期値は ICRU 49 の水の阻止断面積用の値とした．得られたフィッティング関数は以下ようになった．

$$\sigma_{low}(T_s) = 4.203T_s^{0.45} \quad (7.1)$$

$$\sigma_{high}(T_s) = \frac{3.167 \times 10^3}{T_s} \ln \left(1 + \frac{5.562 \times 10^2}{T_s} + 9.256 \times 10^{-3}T_s \right) \quad (7.2)$$

$$\sigma(T_s) = \frac{\sigma_{low}(T_s)\sigma_{high}(T_s)}{\sigma_{low}(T_s) + \sigma_{high}(T_s)} \quad (7.3)$$

得られたフィッティング関数を図 7.3 に示す．図から分かるようにフィッティングによって得られた阻止断面積値は，高エネルギー側では SRIM 2008 の値や，Garcia らが求めた値とほぼ一致することが予想される．水の状態効果は 1MeV/u 以上のエネルギー領域では確認できないと言われており，SRIM 2008 では 1 MeV 以上の領域では水蒸気の阻止断面積の計算値と一致するように液体の水の阻止断面積も計算されている．このことから，

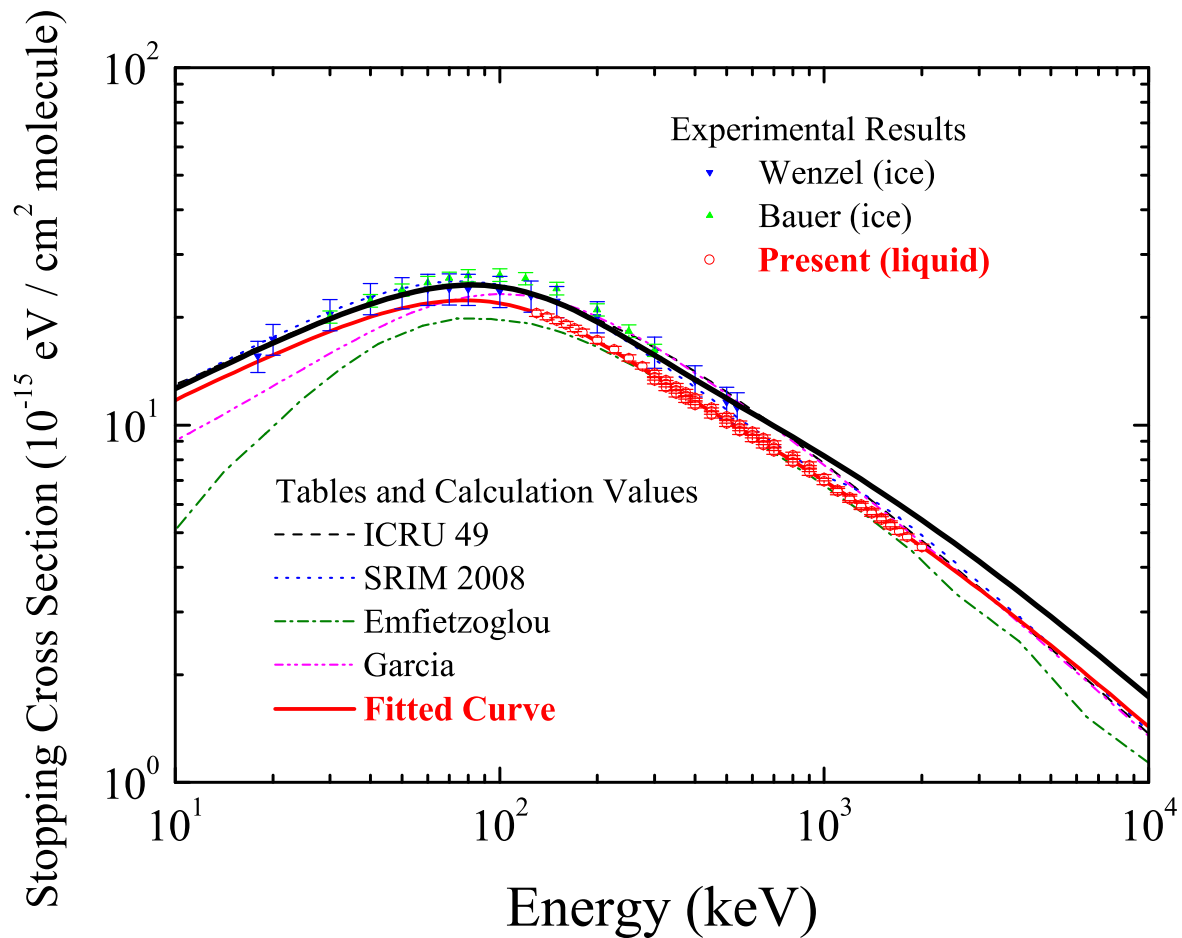


図 7.3 陽子に対する液体の水の阻止断面積．シンボルは氷の阻止断面積のデータをプロットしている (Wenzel[10], Bauer[11])．破線は ICRU 49 の阻止断面積表の値 [12]．点線は SRIM 2008 の計算値 [13]．残りの線は誘電応答関数を用いた理論計算 (Emfietzoglou[65], Gracia[61])．

本研究では測定されていないが，2.0 ～ 3.0 MeV のエネルギー領域においては，水蒸気の阻止断面積と液体の水の阻止断面積の値にはほとんど差が無くなってくると予想される．また，100 keV 付近では Wenzel の得た氷の阻止断面積の値に近づくと予想される．

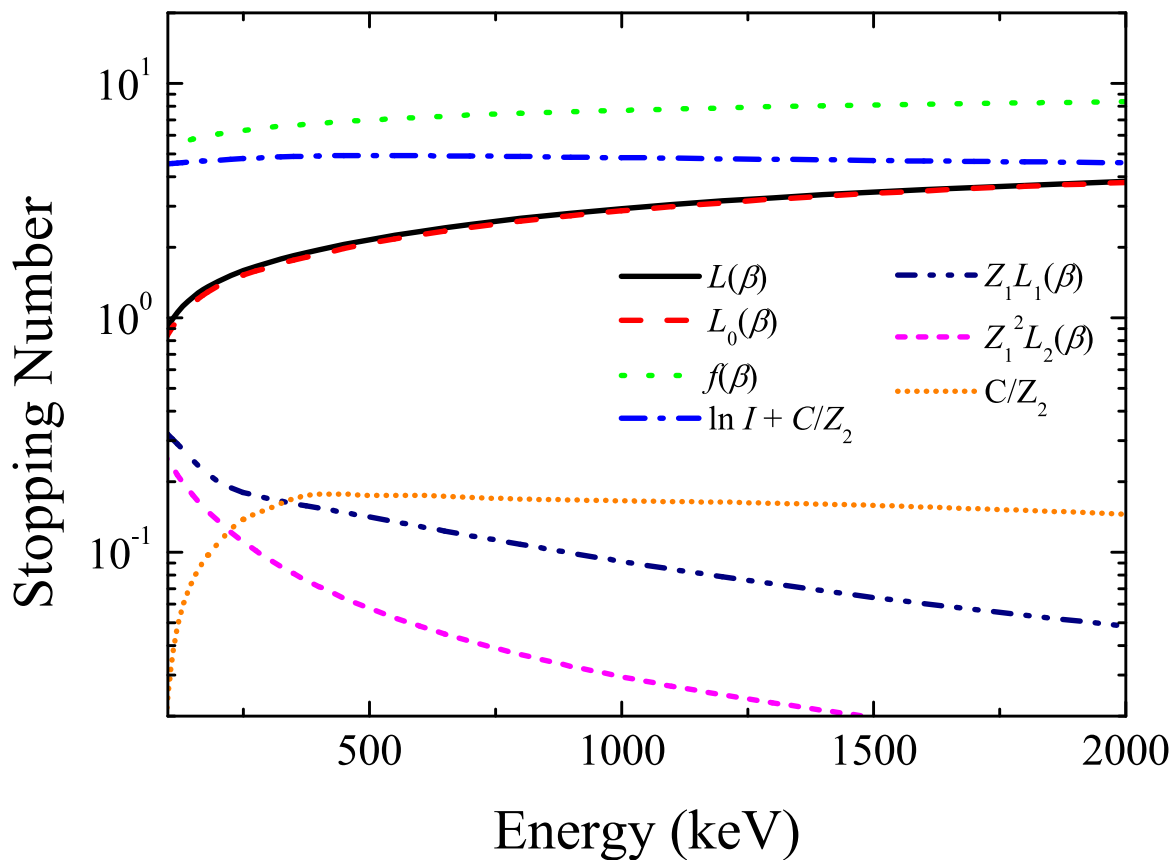


図 7.4 陽子に対する液体の水の阻止断面積における各補正項の値

7.3 平均励起エネルギー

最後に、今回得られた水の阻止断面積をもとに平均励起エネルギーを求めた。なお、計算の手順としては第6章で述べた He の場合と同様である。ただし、陽子の有効電荷については 1.0 とした。今回測定したエネルギー範囲 130 ~ 2000 keV の範囲で平均励起エネルギーを求めると、 103 ± 9.1 eV となり、ICRU 49 の推奨している 75.0 eV や ICRU 73 の 78.0 eV に比べ、極端に大きな値となった。ここで、この用に大きくずれる原因について考察してみる。

図 7.4 に陽子に対する液体の水の阻止断面積における各補正項の値を示す。He に対す

る場合の図 6.7 と比べると陽子に対する水の阻止能に影響する補正項が異なることが分かる．He の場合，荷電粒子の有効電荷が大きいために，主に影響するのは Barkas 補正項であった．そのため，平均励起エネルギーの値の計算において，Barkas 補正項の計算法を変えると平均励起エネルギーの値も変化した．しかし，陽子の場合には Barkas 補正項の大きさは He の場合の $1/4$ 程度になるため，Barkas 補正項はそれほど影響しない．実際に Barkas 効果の計算法を Ziegler の提案している (2.49) 式に変更してみても，得られる平均励起エネルギーの値は 104 ± 11.5 eV とほぼ同じ結果となる．陽子に対する液体の水の阻止断面積において，最も大きく影響するのは図 7.4 から明らかなように殻補正項である．したがって，平均励起エネルギーの値が大きくずれる原因として殻補正項に原因があることが考えられる．本研究で用いた Khandelwall の計算値 [30] をもとにした殻補正項の値は， η の値が小さくなると，負の値を取るようになる．実際に図 7.4 では 400 keV 以下の領域で急激に殻補正項 C/Z_2 が小さくなることが分かる．図には殻補正項の値について Bragg 則を取った結果を示しているが，500 keV 付近で既に酸素原子の殻補正項の値は小さくなり，300 keV 付近で負の値をとる．低エネルギー領域において，本研究で用いた殻補正項の値はこのように極端に小さくなってしまうため，精度があまり良くないと言われている [28]．そこで，殻補正項の値が比較的信用できるであろう，1500 ～ 2000 keV 付近の阻止断面積の値をもとに平均励起エネルギーの値を求めてみた．計算の結果，平均励起エネルギーの値は 89.6 ± 3.0 eV となった．しかし，まだ平均励起エネルギーの値には 10 eV 以上，ICRU 49 やその他の実験や計算などで得られている値より大きい [8, 12, 64, 61, 63, 65]．特に，ほぼ同じ阻止断面積の値を得ている Emfietzoglou らが採用している平均励起エネルギーの値，77.8 eV からずれるのは矛盾しているように思われる．この結果については，以下のように考えることで解決される．本研究では殻補正項の値について，水素様波動関数を用いて計算された酸素原子，水素原子の殻補正項の値をもとに，Bragg 加法則を用いて水の殻補正項を求めた．しかし，2.6 節で述べたように，Bragg 加法則は各原子の電子状態が独立した孤立原子の状態からそう変わらないことを前提にしている．化合物分子の場合，個々の電子状態は分子軌道によって支配されるため，電子状態は孤立原子の状態から大きく変化する．さらに，液体の水分子は自身のもつ極性

によって、周辺の水分子同士と互いに分極相互作用を及ぼしあうため、その電子状態は孤立原子の状態から大きく変化していると考えられる。実際に、ICRU 37 では、表 6.1 に示したように、元素の単体の平均励起エネルギーとは別に、化合物中の H, C, N, O 原子の平均励起エネルギーの値を推奨している [57]。Emfietzoglou らは平均励起エネルギーの値とは別に、殻補正項や Barkas 補正項についても誘電応答関数によって計算し直し、図 7.3 に示した値を得ている [65]。

7.4 まとめ

真空中に導入した液体水標的に 0.9 ~ 2.0 MeV の陽子線を照射し、液体水標的透過後の陽子のエネルギー分布、散乱角度分布を測定した。得られたエネルギー分布、散乱角度分布は He を液体水標的に照射した場合と同様の分布を示し、液体水標的内において陽子線が多重散乱を受けていることが分かった。

モンテカルロシミュレーションによって実験結果の再現計算を行い、陽子線に対する液体水標的の阻止断面積を求めた。その結果、液体水標的の阻止断面積は (4.3) 式の ICRU 49 の計算法で求めた阻止断面積の値よりも 10 ~ 15 % 程小さいことが分かった。得られた阻止断面積の値は、Emfietzoglou らの誘電応答関数を用いた理論計算の値と非常に良く一致した。また、得られた阻止断面積に対してフィッティング関数を求めたところ、2.0 ~ 3.0 MeV 付近で、ICRU 49 や SRIM 2008 の値と一致すると予想される。

最後に陽子に対する液体の水の阻止断面積の値から、水の平均励起エネルギーの値を求めた。測定した全エネルギー範囲の阻止断面積について平均励起エネルギーの値を求めたところ 103 ± 9.1 eV となり、ICRU 49 の推奨値 75.0 eV から大きくずれてしまった。この原因として、殻補正項の値がずれていることが考えられたため、比較的信用の殻補正項の値が信用できる 1500 ~ 2000 keV の測定結果について、再計算を行ったところ、平均励起エネルギーの値は 89.6 ± 3.0 eV となった。残りの 10 eV あまりのずれの原因としては、本研究で用いた殻補正項の計算法において、分子軌道を考慮に入れていないためと考えた。

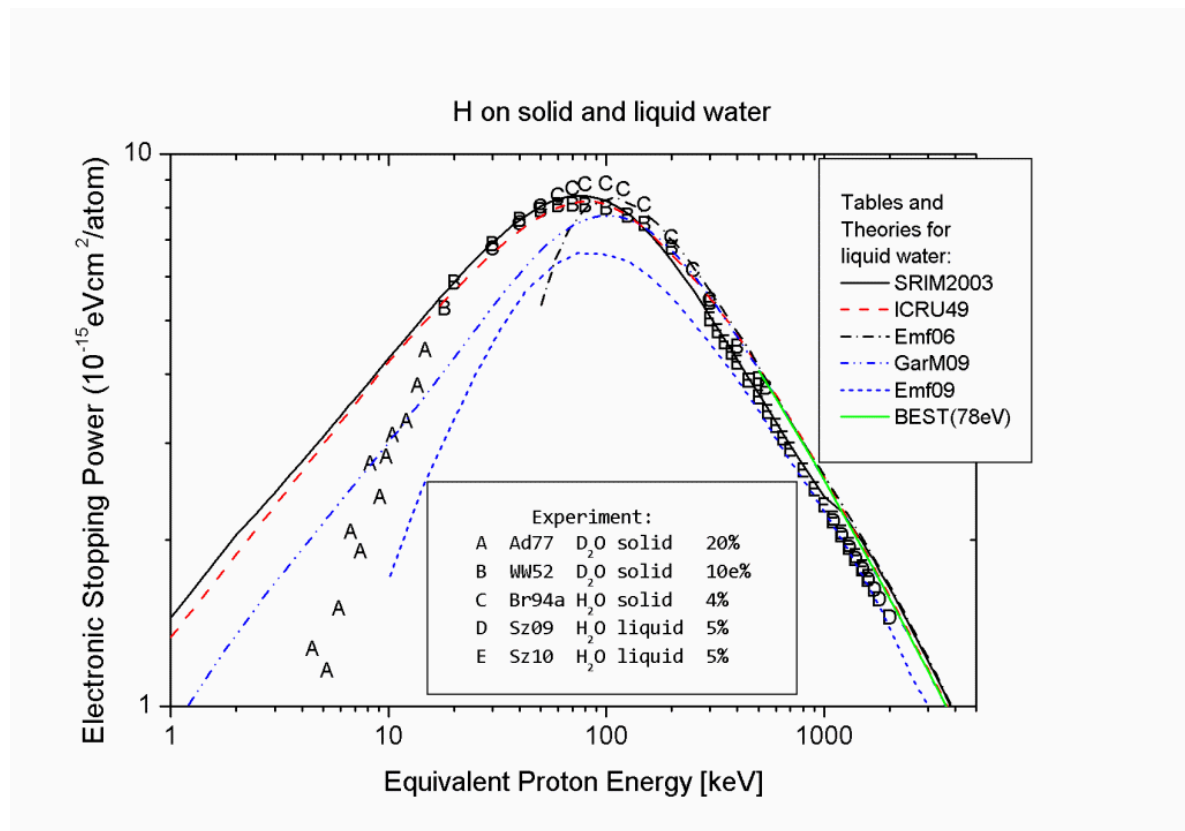


図 7.5 陽子に対する液体の水の阻止断面積．Helmut Paul 氏のホームページより引用 [9]

陽子に対する液体の水の阻止断面積の値を実験によって得た例は本研究が世界で初めてであり，その結果は誘電応答関数を用いた理論計算と非常に良く一致した．なお，本研究の成果は ICRU 49 や ICRU 73 の編集者を務めている Helmut Paul 氏の阻止断面積データベースにも登録された [9]．図 7.5 に最新の陽子に対する水の阻止断面積の値を Paul 氏がプロットした図を示す．

第 8 章

液体アルコール標的の阻止断面積測定

化合物の阻止能，阻止断面積は Bragg 加法則によって見積もられ，実際の阻止断面積と良く一致することが知られている．水以外の大変よく使用される溶媒として，アルコール類やベンゼンなどの有機溶媒がある．これらの阻止断面積については α 線源を用いた阻止断面積測定と共に，蒸発させて気体とした標的の阻止断面積測定が数多く行われ，化合物の阻止断面積を計算するモデルが提案されている．前章では液体の水の阻止断面積が ICRU 49 や SRIM 2008 の阻止断面積の値よりも 10 % 程度小さいことが分かった．Bragg 加法則によれば，メタノール (CH_3OH) やエタノール ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$) の阻止断面積は水 (H_2O) の阻止断面積にそれぞれのアルキル基 (C_nH_{2n}) 分の阻止断面積を加えたものに相当するはずである．従って，水の阻止断面積が 10 % 小さいならば，液体アルコール類の阻止断面積も小さくなるはずである．そこで，液体アルコール標的についても同様の阻止断面積測定実験を行い，Bragg 加法則などについて考察を行った．

8.1 液体アルコール標的

実験では水の場合と同様にノズルからアルコールを噴射し、液体分子線としたものを標的とした。標的としたアルコールは和光純薬製のメタノール (CH_3OH , 純度 99.7 %), エタノール ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$, 純度 99.5 %), 1-プロパノール ($\text{C}_3\text{H}_7\text{OH}$, 純度 99.7 %) である。水の場合と比べて不純物の含有量が多いが、使用したアルコール標的に含まれる主な不純物の成分は精製時に取り除けなかった水が主な成分であると考えられる。これらの比率はいずれも 0.5 % 以下であり、エネルギー損失や散乱に与える影響は非常に少ないと考えられる。

8.2 液体エタノール標的透過後の He^{2+} の測定

水の場合と同様に、液体エタノール標的に対して 4.0 MeV の He^{2+} を照射し、エネルギー分布と散乱角度分布を測定した。それぞれの測定結果を図 8.1, 8.2 に示す。測定の結果、液体の水を標的として測定を行った場合と同様のスペクトルが得られた。ここで、Al の場合と同様に阻止能を簡単に見積もってみる、標的の径を $20\ \mu\text{m}$ とすれば、阻止能は $104\ \text{keV}/\mu\text{m}$ となる。SRIM 2008 で計算した He に対する液体エタノールの阻止能は $109.1\ \text{keV}/\mu\text{m}$ であり、実際の液体エタノールの阻止能は 4.7 % 程度小さいという結果となった。しかし、液体の水とエタノールの性質は大きく異なるため、蒸気圧や密度は大きく異なる。特に、水と比べてエタノールは温度によって密度が大きく変化するため、実際のエタノールの密度は常温のエタノールの密度とは異なることが予想される。そこで、第 3 章で行った液体分子線の温度計算をエタノールについても行い、荷電粒子線照射位置でのエタノールの密度を見積もった。計算に必要な物理量として、温度 T [K] におけるエタノールの蒸気圧 $P(T)$ [bar] を Antoine の式を用いて、

$$\log_{10} P(T) = 5.37229 - \frac{1670.409}{T - 40.191} \quad (8.1)$$

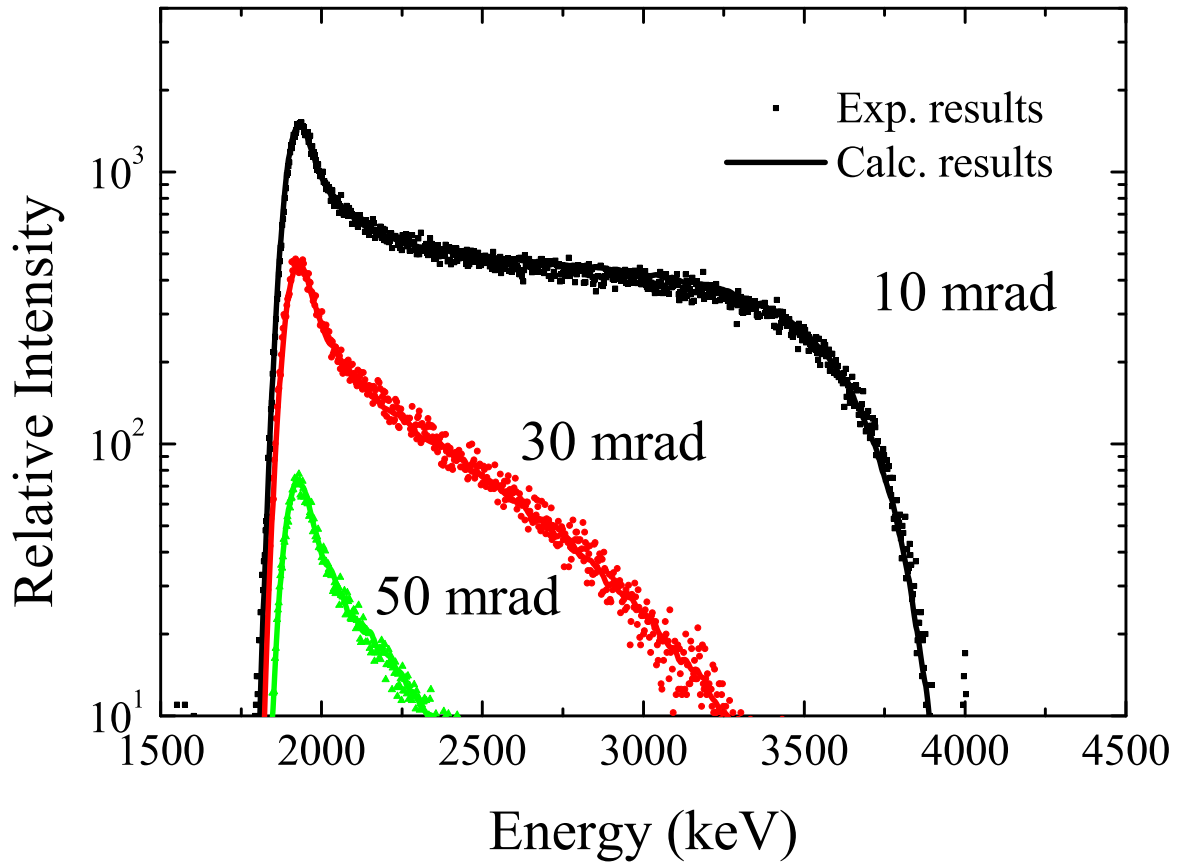


図 8.1 4.0 MeV He^{2+} の液体エタノール標的透過後のエネルギー分布

として求めた．この式は Kretschmer ら [66] が求めた値であるが，対象としている温度領域は 273～351 K であるため，273 K 以下の値については必ずしも正しい値とは言えない．また，エタノールの密度については，エタノールの体積膨張率を $\alpha_m = 1.101 \times 10^{-3} [\text{K}^{-1}]$ として，温度 T [K] におけるエタノールの密度 $\rho(T)$ を次の様にして求めた．

$$\rho(T) = \rho_{15}(1 + \alpha_m(T_{15} - T)) \quad (8.2)$$

ここで， ρ_{15} は 15°C におけるエタノールの密度 ($\rho_{15} = 0.7940 \text{ g/cm}^3$) であり， $T_{15} = 15 + 273.15 \text{ K}$ である [67]．ここで，計算に用いた体積膨張率は 0～30 °C のエタノールについて測定された値であり，0 °C 以下の密度の値については外挿してエタノールの密度を求めていることに相当する．比熱については，エタノールの定圧モル比熱

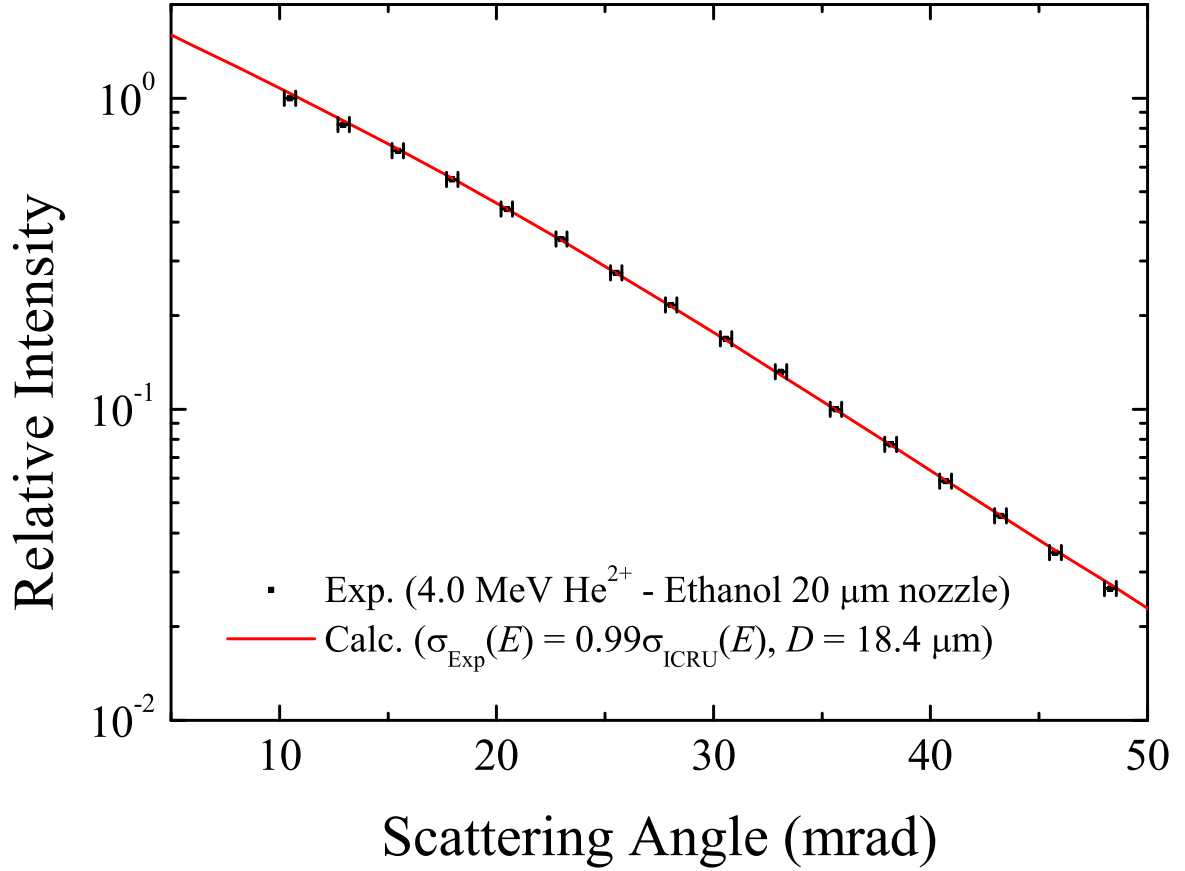


図 8.2 4.0 MeV He^{2+} の液体エタノール標的透過後の散乱角度分布

$C_P(T)$ [J/mol·K] を

$$C_P(T) = 106.172 + 0.174968(T - 273.15) \quad (8.3)$$

と一次式に近似して求めた [67]．エタノールの潜熱については，次の経験式 [68, 69]

$$\Lambda(T) = 50.43 \frac{\exp 0.4475 T_r}{(1 - T_r)^{0.4989}} \text{ [kJ/mol]}, \quad T_r = T/513.9 \quad (8.4)$$

を用いて求めた．なお，この潜熱の式は 298~469 K について提案されているものである．

以上の式を用いて，ノズルの先端から 1 mm 下流の位置での液体エタノールの温度を -30°C と見積もり，液体エタノールの密度を 0.8316 g/cm^3 とした．この密度の値を用いて，液体の水の場合と同様にモンテカルロシミュレーションで再現計算を行い，液体エ

タノールの阻止断面積を求めた．計算に必要な阻止断面積は，ICRU 49 の計算式によって得られる各原子の阻止断面積を足しあわせた基準の阻止断面積 σ_{ref} を次の様に求め，定数 α 倍したのち液体の阻止断面積 σ_{exp} として入力した．

$$\sigma_{\text{Ref}} = 2\sigma_{\text{C}} + 6\sigma_{\text{H}} + \sigma_{\text{O}}, \quad \sigma_{\text{exp}} = \alpha\sigma_{\text{ref}} \quad (8.5)$$

再現計算の結果を図 8.1, 8.2 に示す．液体の水の場合と同様に，再現計算の結果はエネルギー分布，散乱角度分布ともに実験結果と非常に良く一致した．また，液体エタノールの阻止断面積は基準とした阻止断面積より $1.0 \pm 2.0\%$ 小さい結果となり，ICRU 49 の α 線に対する各原子の阻止断面積をもとに求めた阻止断面積と非常に良く一致した．

一方で，液体エタノール標的の径は $18.4 \mu\text{m}$ と使用したノズルの径よりも 10% 程度小さい結果となった．この原因としては大きく 3 つの原因が考えられる．まず一つ目は，蒸発によって標的の径が小さくなったことである．エタノールは水よりも蒸気圧が大きく，蒸発するペースが早いため，標的の径が小さくなっている可能性である．二つ目の理由は，エタノールの密度の見積もりがあまり正確ではないことが挙げられる．密度計算に用いた比熱や，潜熱，蒸気圧のデータはおおむね 0°C 以上の領域で測定された実験値をもとにしており， 0°C 以下の値については推測値である．従って，必ずしも正しいエタノールの温度を見積もることができているとは言えない．また，第 3 章でも述べたように，衝突槽に導入した時点でのエタノールの温度によっても，ビーム照射位置のエタノールの温度は大きく変わる．これに加えて，エタノールの密度の温度依存性は，水に比べて非常に大きく，温度が 10 K 変化すれば密度は 1% 変化する．そのため，実際の液体エタノールの密度が前述の計算で求めた密度よりも小さく，結果として再現計算で得られた液体標的の径が小さくなったことが考えられる．最後の原因として，そもそも実験に使用したノズルの径が $20 \mu\text{m}$ より小さい可能性である．本研究で使用している武蔵エンジニアリング製のノズル径の不確かさは 10% 程度であり，実際のノズル径が $18 \mu\text{m}$ であったことも十分に考えられる．従って，再現計算で得られた標的径の結果は密度の見積もりの不確かさも考慮すると，誤差の範囲内と言える．

一方で，再現計算で求めた阻止断面積の値については密度や標的径の値がそれぞれ正確

項目	H	C	O
原子番号	1.0	6.0	8.0
原子量	1.00794	12.01	15.9994
平均励起エネルギー	19.2 eV	81 eV	106 eV

表 8.1 アルコールの構成原子の原子番号と原子量，平均励起エネルギー．原子番号，原子量は NIST の周期表から引用 [56]．H，O の平均励起エネルギーの値は ICRU 37 から液体，固体化合物中の H，C，O 原子用の平均励起エネルギーを表示している [57]．

である必要はない．第 5 章での議論からも分かるように，荷電粒子が受けるエネルギー損失 ΔE は，標的の有効厚さ，すなわち荷電粒子が透過した領域に存在した標的分子（原子）の数 N によって決まり，

$$\Delta E = \sigma_{\text{exp}} N, \quad N = \rho t \quad (8.6)$$

で表される．ここで， $t(0 \sim D)$ は荷電粒子が標的中を透過した距離である．従って，散乱角度分布およびエネルギー損失分布から得られる情報はエネルギー損失分布に関する情報と，標的の有効厚さであり，再現計算で決めているのは，あくまでも標的の阻止断面積と標的の有効厚さ（標的密度と標的径の積に相当）ということになる．したがって，再現計算で得られる阻止断面積の値について，標的密度の見積もり計算の不確かさが影響を与えることは無い．

He に対する液体エタノールの阻止断面積を図 8.3 に示す．図からよく分かるように，測定の結果得られた阻止断面積の値は過去の測定データや SRIM 2008 の値と非常に良く一致した．さらに，この測定で得られた阻止断面積の値をもとに，液体エタノールの平均励起エネルギーを求めたところ， 61.9 ± 1.8 eV となった．この値は ICRU 37 の液体化合物中の各原子の平均励起エネルギーの値から Bragg 加法則によって求めた値 63.1 eV と非常に良く一致した．計算に用いた各原子のパラメーターは表 8.1 に示す．

ここまでのまとめとして，本研究の手法で水以外のエタノールなどのアルコール標的に

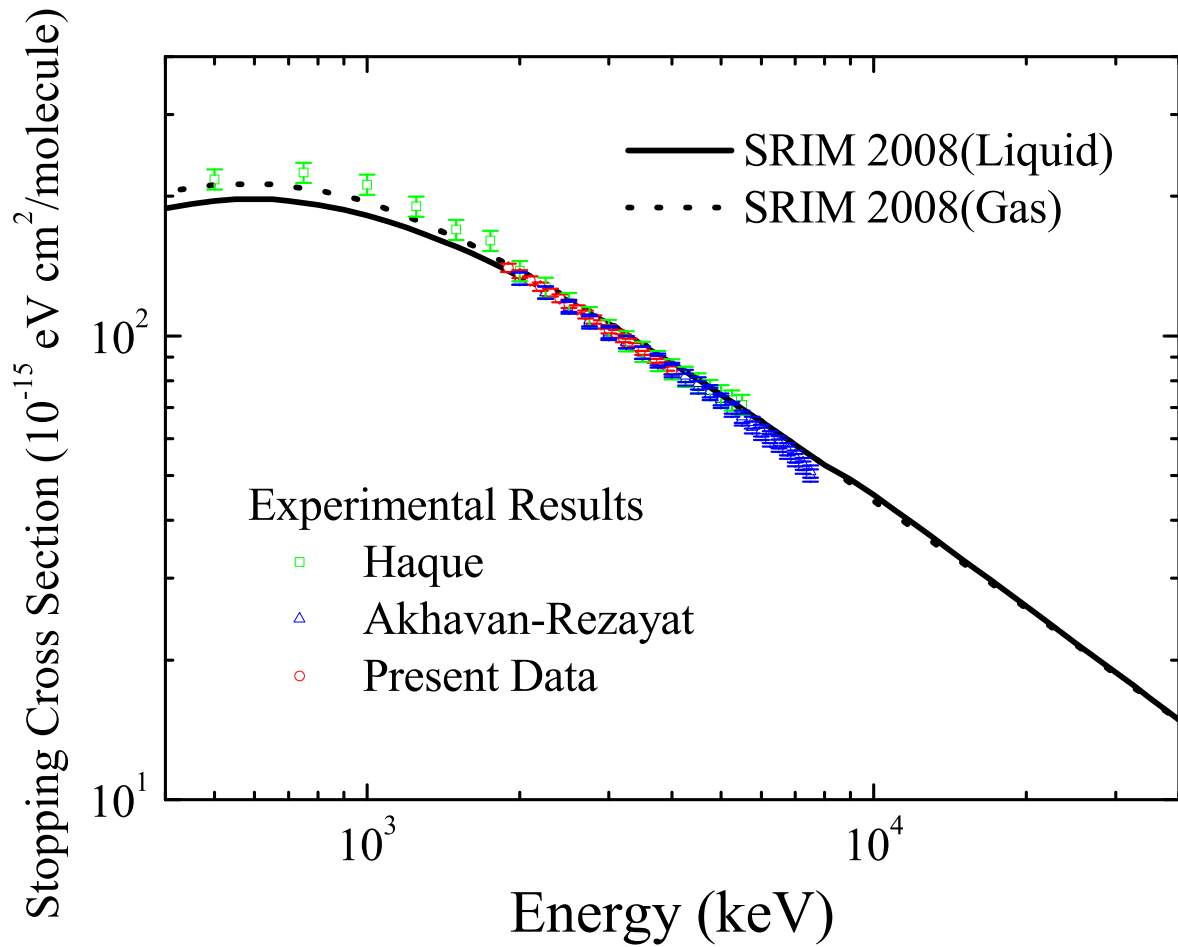


図 8.3 He に対する液体エタノールの阻止断面積．実線および破線は半経験的阻止断面積計算コード SRIM 2008 による計算値で，それぞれ液体，気体の結果である [13]．シンボルは過去の α 線源を用いた実験値であり，□ は Haque らの値 [6]．△ は Akhavan-Rezayat らの値 [5]．

についても阻止断面積を測定できることが分かった．また，得られた He に対する液体エタノールの阻止断面積の値は過去の α 線源を用いた測定結果と良く一致し，平均励起エネルギーの値についても ICRU 37 の各原子の平均励起エネルギーの値から Bragg 加法則によって求めた平均励起エネルギーの値と非常に良く一致した．

8.3 H^+ に対する各アルコールの阻止断面面積

前節の結果から，液体アルコールについても本研究の手法で液体アルコール標的の阻止断面面積を求められることがわかった．そこで，メタノール，エタノール，1-プロパノールに対して，それぞれ H^+ を照射してエネルギー分布，散乱角度分布を測定し，モンテカルロシミュレーションによる再現計算によって阻止断面面積を求めた．なお，基準とする阻止断面面積 σ_{ref} については， He^{2+} に対する阻止断面面積を求めた場合と同様に，ICRU 49 の各原子の阻止断面面積の値を用いて加法則で求めたそれぞれのアルコールの阻止断面面積とした．表 8.2 に再現計算によって得られた阻止断面面積を基準とした阻止断面面積 σ_{ref} に対する比として示す．なお，メタノール，1-プロパノールの 150 ～ 840 or 870 keV の H に対する阻止断面面積測定には，入射粒子にそれぞれ 1680 keV，1740 keV の H_2^+ を用いている． H_2^+ のような分子イオンの場合，クラスター効果によって阻止断面面積が異なる可能性もあるが，その様な影響が現れるのは液体の数 nm 程度の表面のみであり，本研究における阻止断面面積測定には影響しない．測定の結果得られた阻止断面面積は ICRU 49 の各原子の阻止断面面積より求めた各アルコールの阻止断面面積の値よりも 15 から 20% 程度小さい結果となった． H^+ に対する液体アルコールの阻止断面面積は半経験的阻止断面面積計算コードである SRIM 2008 で求めることができるので，本研究で得られた結果と比較を行った．SRIM 2008 の計算値と本研究で得られた阻止断面面積プロットした図 8.4 に示す．図から分かるように，本研究で得られた阻止断面面積の値は 150 から 500 keV の低エネルギー側では SRIM 2008 の値と良く一致し，1.0 から 2.0 MeV の高エネルギー側では大きくずれることが分かった．

次に，本研究で得られた阻止断面面積の値について ICRU 49 の阻止断面面積の式 ((4.3) 式) をもとに近似曲線を求めた．得られた近似曲線を図 8.4 に示す．フィッティングの結果得られた各パラメーター $A_2 \sim A_5$ の値については表 8.3 に示す．図から分かるように，近似曲線によって各アルコールの阻止断面面積の値を上手く再現することができた．また，近似曲線から予想される高エネルギー側の阻止断面面積の値は SRIM 2008 の阻止断面面積の値

アルコール	エネルギー分布の範囲 [keV]	$\sigma_{\text{exp}}/\sigma_{\text{ref}}$ [%]
メタノール	150 ~ 840	87*
	530 ~ 1500	80
	1330 ~ 2000	78
エタノール	150 ~ 890	86
	500 ~ 1500	83
	1330 ~ 2000	80
1-プロパノール	150 ~ 870	85*
	450 ~ 1500	81
	1320 ~ 2000	79

表 8.2 H^+ に対する液体アルコールの阻止断面積測定結果．* 入射粒子に H_2^+ を用いて測定した．

アルコール	A_2	A_3	A_4	A_5
メタノール	9.26928	2645.14	11849.1	0.108809
エタノール	14.0952	4371.35	5470.07	0.0712962
1-プロパノール	18.0924	5757.29	5688.87	0.0649306

表 8.3 本研究で得られた液体アルコールの阻止断面積の値に対する近似曲線 ((4.3) 式) の各パラメーターの値．

よりもは 20% 以上小さい値を取ることが予想される．前章で求めた水の阻止断面積においては，2.0 から 3.0 MeV 付近で高エネルギー側で SRIM の計算結果と一致することが予想されたが，アルコールの結果においては一致する点は予想できなかった．この原因として，次の様なことが挙げられる．液体の水，アルコールの阻止断面積については古くから α 線源を用いた測定が行われてきた [5, 6]．一方で，陽子線に対する阻止断面積の測定においては，水については蒸気，固体の各状態について測定が行われているものの，アル

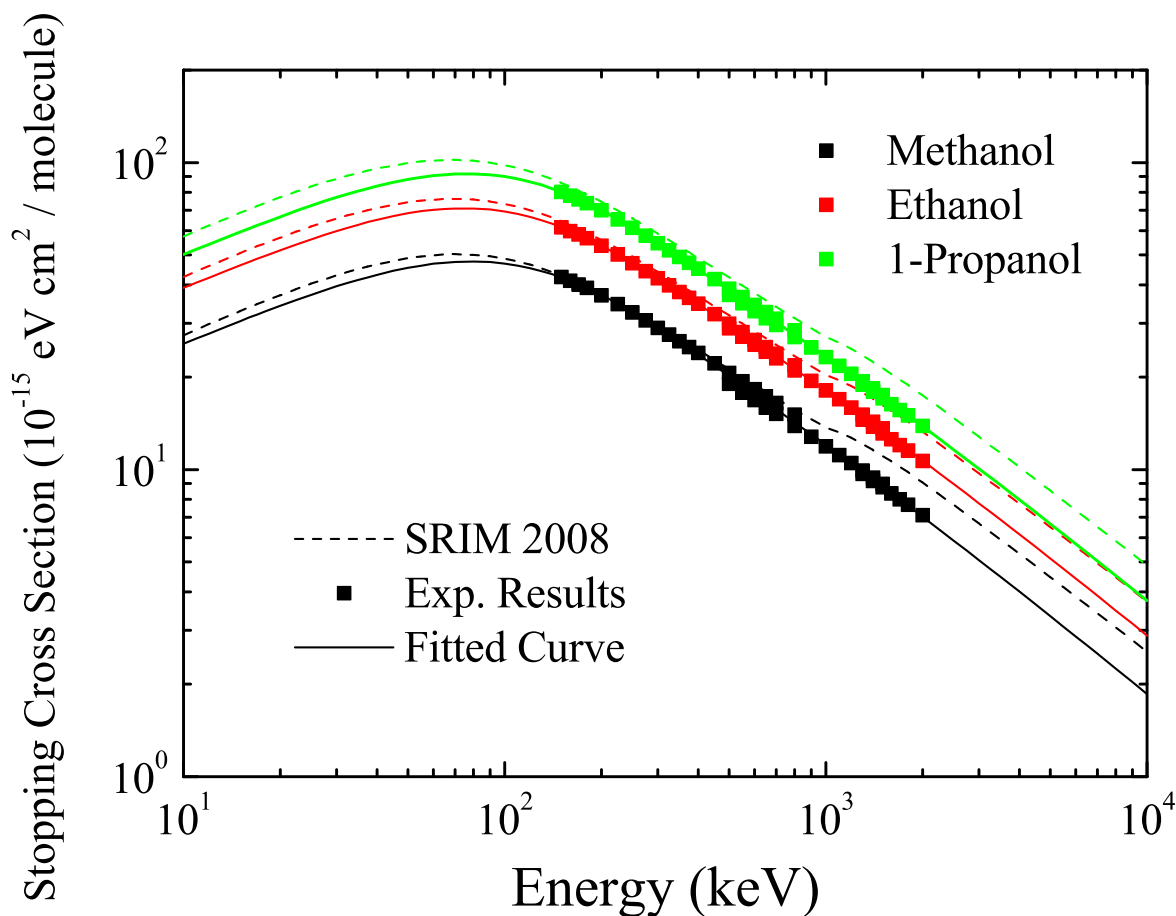


図 8.4 H^+ に対する液体アルコールの阻止断面積．□ は本研究で得られた値．破線は SRIM 2008 の計算値．実線は本研究で得られた値に対する近似曲線．

コール類についてはこれまで測定が行われていない．従って，半経験的阻止断面積計算コード SRIM 2008 が求めているアルコールの阻止断面積は α 線源を用いた阻止断面積測定の結果をもとに，陽子に対する阻止断面積を計算しているため，実際の阻止断面積の値から高エネルギー側でずれているのである．一方で，低エネルギー側においては，様々な化合物に対する阻止断面積測定データや理論計算に基づいた阻止断面積計算を行っており，高エネルギー側と比べて，本研究で得られた値と一致している．この低エネルギー側における阻止断面積計算法については後ほど考察する．

図 8.4 をアルコールの炭素数 n について見た図を図 8.5 に示す．この図は，250 から

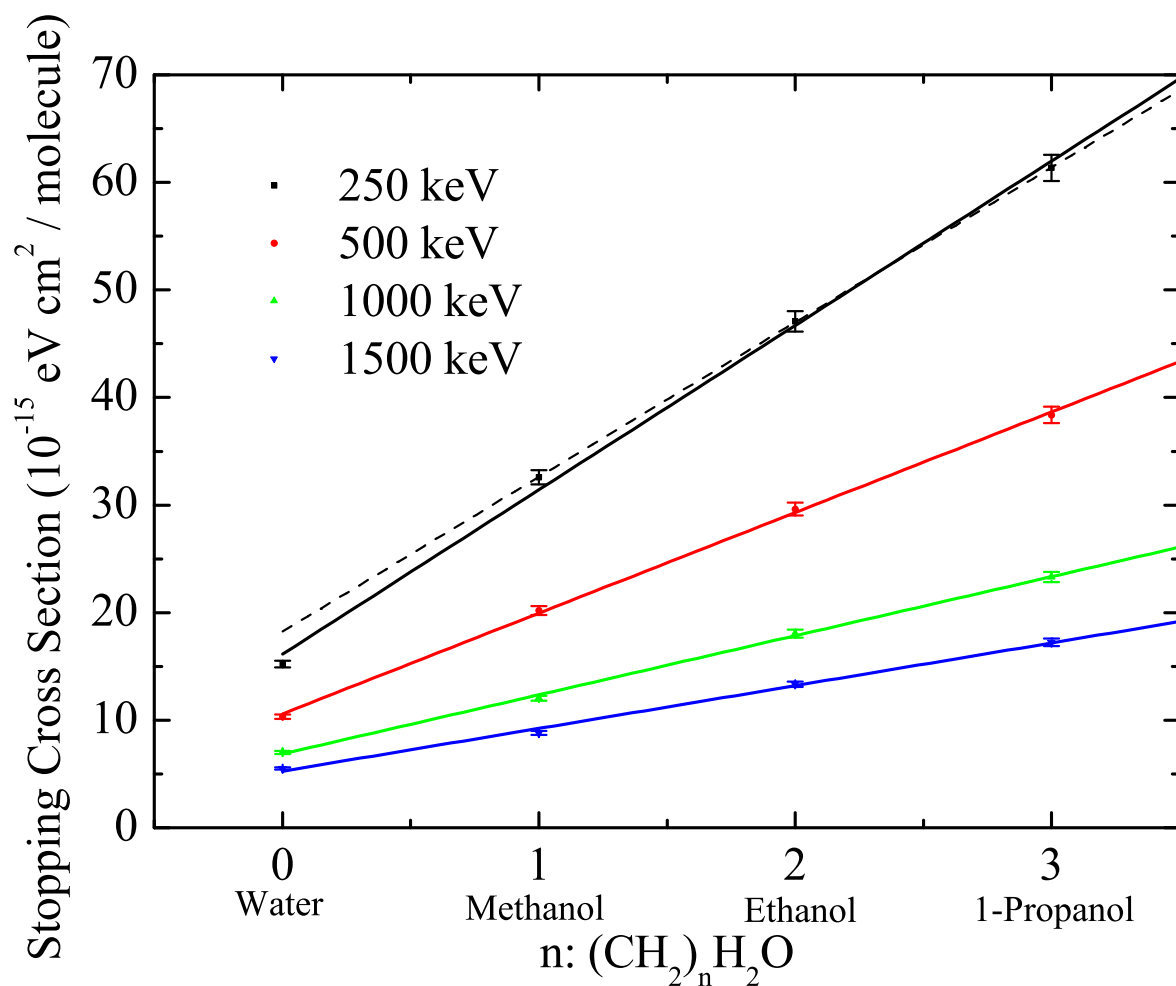


図 8.5 H^+ に対する液体アルコールの阻止断面積の炭素数依存性．横軸はアルコールに含まれる炭素数 n ．縦軸はアルコールの阻止断面積．点は本研究で得られた 250 から 1500 keV の陽子に対する各アルコールの阻止断面積の値を示す．直線は各エネルギー H^+ に対するアルコールの阻止断面積の近似直線．アルキル基の鎖の長さ (炭素数 n) に比例して，分子に含まれる CH_2 の数が増えるため，阻止断面積が増加する様子が分かる．破線は 250 keV のデータについて，アルコールの阻止断面積のみについて求めた近似直線．

H ⁺ のエネルギー [keV]	CH ₂ の阻止断面積 [$10^{-15}\text{eVcm}^2/\text{molecule}$]
250	15.3
500	9.36
1000	5.49
1500	3.97

表 8.4 各エネルギーの H⁺ に対する CH₂ の阻止断面積

1500 keV の H⁺ に対する各アルコールの阻止断面積の値をそれぞれプロットしたもので、横軸をアルコールに含まれる炭素数 n 、縦軸を阻止断面積としている。図から分かるように、炭素数が増えると阻止断面積がそれに比例して増加する様子が分かる。これは炭素数が 1 つ増加する毎にアルコールを構成する CH₂ が増えるため、そのぶん阻止断面積が増えるためである。従って、第 2.6 節で述べた Bragg 加法則が液体の水、アルコールについても非常に良く成立していることが分かる。つづいて、それぞれのエネルギーの H⁺ に対するアルコールの阻止断面積について近似直線を求め、CH₂ が増える毎に阻止断面積がどれだけ増加するかを調べた。得られた近似直線の傾き、すなわち CH₂ の阻止断面積を表 8.4 に示す。得られた近似直線を図 8.5 に実線で示す。図から分かるように、それぞれのエネルギーの H⁺ に対するアルコールの阻止断面積について求めた近似直線は測定によって得られた値とよく一致した。特に 1000 keV、1500 keV の結果について求めた近似直線は非常に良く一致しており、高エネルギー領域では特に Bragg 加法則が非常によく成立することを示している。

一方、低エネルギー側の結果については、それぞれのアルコールの阻止断面積の値はおおむね近似直線に一致するものの、水、メタノールの値はエラーバーの範囲（不確かさを 2% としている）を超えている。そこで、250 keV の H⁺ に対するアルコールの阻止断面積の値のみについて近似直線を求めて、比較を行った。結果を図 8.5 に破線で示す。アルコールの阻止断面積のみで求めた近似直線は実験で得られたアルコールの阻止断面積と非常に良く一致したが、第 7 章で求めた液体の水の阻止断面積の値から 10% ほど大きい値

となった．この結果は，水 (H₂O) に対して加わった CH₂ の阻止断面積と，メタノール (CH₃OH)，エタノール (C₂H₅OH) に加わった CH₂ の阻止断面積が，それほど大きなずれではないが異なることを示している．

この結果については，Ziegler と Manoyan が提案した Core and Bond 法を用いて説明できる [14]．この手法は化合物の阻止断面積を計算する際に単純に各原子の阻止断面積を足しあわせるのではなく，化学結合の種類を考慮する手法である．2 原子分子 XY の阻止断面積 σ_{XY} を考える場合，化学結合に関与していない原子の内殻電子の阻止断面積 σ_X^{core} ， σ_Y^{core} と化学結合に関与している電子の阻止断面積 $\sigma_{XY}^{\text{bond}}$ との足しあわせで，分子の阻止断面積を求める．この手法で水および各アルコールの阻止断面積を表すと，次のようになる．

$$\sigma_{\text{H}_2\text{O}} = \sigma_{\text{O}}^{\text{core}} + 2\sigma_{\text{OH}}^{\text{bond}} \quad (8.7)$$

$$\sigma_{\text{CH}_3\text{OH}} = \sigma_{\text{C}}^{\text{core}} + \sigma_{\text{O}}^{\text{core}} + 3\sigma_{\text{CH}}^{\text{bond}} + \sigma_{\text{CO}}^{\text{bond}} + \sigma_{\text{OH}}^{\text{bond}} \quad (8.8)$$

$$\sigma_{\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}} = 2\sigma_{\text{C}}^{\text{core}} + \sigma_{\text{O}}^{\text{core}} + 5\sigma_{\text{CH}}^{\text{bond}} + \sigma_{\text{CC}}^{\text{bond}} + \sigma_{\text{CO}}^{\text{bond}} + \sigma_{\text{OH}}^{\text{bond}} \quad (8.9)$$

$$\sigma_{\text{C}_3\text{H}_7\text{OH}} = 3\sigma_{\text{C}}^{\text{core}} + \sigma_{\text{O}}^{\text{core}} + 7\sigma_{\text{CH}}^{\text{bond}} + 2\sigma_{\text{CC}}^{\text{bond}} + \sigma_{\text{CO}}^{\text{bond}} + \sigma_{\text{OH}}^{\text{bond}} \quad (8.10)$$

ここで，水素の電子は全て化学結合に使われるので $\sigma_{\text{H}}^{\text{core}}$ は考えない．以上の式を用いて，CH₂ の阻止断面積に相当するメタノールと水，エタノールとメタノール，1-プロパノールとエタノールの差をとると，次のようになる．

$$\sigma_{\text{CH}_3\text{OH}} - \sigma_{\text{H}_2\text{O}} = \sigma_{\text{C}}^{\text{core}} + 3\sigma_{\text{CH}}^{\text{bond}} + \sigma_{\text{CO}}^{\text{bond}} - \sigma_{\text{OH}}^{\text{bond}} \quad (8.11)$$

$$\sigma_{\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}} - \sigma_{\text{CH}_3\text{OH}} = \sigma_{\text{C}}^{\text{core}} + 2\sigma_{\text{CH}}^{\text{bond}} + \sigma_{\text{CC}}^{\text{bond}} \quad (8.12)$$

$$\sigma_{\text{C}_3\text{H}_7\text{OH}} - \sigma_{\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}} = \sigma_{\text{C}}^{\text{core}} + 2\sigma_{\text{CH}}^{\text{bond}} + \sigma_{\text{CC}}^{\text{bond}} \quad (8.13)$$

上の式からも明らかなように，(8.13) 式，(8.12) 式の右辺は全く同じであるが，メタノールと水の差である (8.11) 式の右辺だけが異なる．従って，水に加わる CH₂ 分の阻止断面積の大きさと，メタノール，エタノールに加わる CH₂ 分の阻止断面積の大きさが異なるのである．

上のようなモデルで，低エネルギー側での CH₂ 分の阻止断面積の説明を行ったが，この様に考えた場合，高エネルギー側でも同様の差がでることになる．しかし，実際の結

果にこのような差は見られなかった．このことは次の様に考えることで説明できる．Core and Bond 法は阻止断面積計算における Bragg 加法則に，分子軌道の概念を導入したことに相当する．従って，Bethe-Bloch の阻止能公式において，標的物質の電子状態に依存する項，すなわち，平均励起エネルギーと殻補正項，Barkas 補正項に修正を加えたことになる．これまでも触れてきたように，殻補正項及び Barkas 補正項は入射粒子のエネルギーが高くなるにつれて阻止能への寄与は急激に小さくなるため，結果として，それぞれの電子がどのような分子軌道に存在するかどうかなどの電子状態のわずかな差の影響はほとんど反映されなくなる．唯一，入射粒子に依存しない平均励起エネルギーの値だけが最後まで影響を及ぼすが，(2.39) 式から分かるように平均励起エネルギーの値は $\ln I$ で Stopping Number に影響するため，電子状態のわずかな差に起因する平均励起エネルギーのずれはほとんど阻止能に反映されない．具体的には，第 2.6 節の表 2.3 で説明したように，電子状態の異なる単体の水素，酸素の平均励起エネルギーから求めた水の平均励起エネルギーと実際に知られている気体や液体の水の平均励起エネルギーの差はせいぜい 5 ～ 10 eV 程度しか無く，このようなわずかな差は 1 MeV/u 以上の阻止能においてはほとんど影響しない．

Ziegler と Manoyan が提案した Core and Bond 法は α 線や Li イオンに対する液体標的の阻止能測定と， H^+ ， α 線に対する気体標的の阻止能測定のデータをもとに考え出された半経験的な計算モデルであり，SRIM 2008 において化合物の阻止断面積計算に使用されている [13, 14]．これまでの有機化合物の阻止断面積測定は分子量の小さいメタンやエタンなどの気体分子を標的としたものと，逆にポリプロピレンなどの高分子材料の固体標的としたものがほとんどである．そして，これらの中間に位置するアルコールやヘキサン，ベンゼンなど，溶媒としてよく利用される有機化合物については，常温で液体状態であるためほとんど測定がなされてこなかった．そのため，液体の化合物の阻止断面積については α 線に対する阻止断面積測定データが主になって Core and Bond 法が構築されているため，決して完全とは言えないのが現状である．特にその顕著な現れが，図 8.4 における 1.0 MeV 付近の SRIM 2008 の計算値の不自然な屈曲である．本研究は世界で初めて H^+ に対する液体アルコールの阻止断面積を測定し，それぞれの標的間で Bragg 加法

則が成立することを確認した．本研究で用いた阻止断面積測定手法は他の荷電粒子，液体標的についても適用可能であり，今後の展開によって液体化合物の阻止断面積に関する情報が蓄積されれば，上記の様な不自然な屈曲は改善されるはずである．

8.4 まとめ

液体の水の場合と同様に，メタノール，エタノール，1-プロパノールについても H^+ および He^{2+} を照射してエネルギー分布および散乱角度分布を測定し，再現計算によって阻止断面積を求めた．

He に対する液体エタノールの阻止断面積を測定した結果，He に対する液体エタノールの阻止断面積の値は過去の α 線源を用いた測定データ [5, 6] と半経験的阻止断面積計算コード SRIM 2008[13] の計算値と非常に良く一致した．このことから，液体のアルコールについても本研究の手法で阻止断面積を求められることが分かった．また，得られた結果について平均励起エネルギーを求めたところ， 61.9 ± 1.8 eV となり，ICRU 37 の化合物中の各原子の平均励起エネルギーの値から Bragg 加法則で求めた値と非常に良く一致した．

以上の結果をふまえて， H^+ に対する液体アルコールの阻止断面積を求めた．なお，H に対する液体のアルコールの阻止断面積測定に成功したのは本研究が初めてである． H^+ に対する液体アルコールの阻止断面積は SRIM 2008 の阻止断面積の計算値に対して 0.15~0.5 MeV 付近では一致するものの，1.0~2.0 MeV では 20% 以上も SRIM 2008 の阻止断面積の値よりも小さい結果となった．得られた各アルコールの阻止断面積について，Bragg 加法則が成立するかどうか考察を行った．それぞれのアルコールの阻止断面積について， CH_2 の数に比例して阻止断面積が増加することが確認でき，液体の水，アルコール間で Bragg 加法則が成立することが分かった．また，低エネルギー側において，Bragg 加法則からわずかにずれることが確認されたが，Bragg 加法則の拡張モデルである Core and Bond 法を考えることで説明できた．

第 9 章

総括

本研究では高速荷電粒子と液体物質の相互作用をエネルギー付与観点から解明するために、液体水標的透過後の陽子、He イオンビームのエネルギー分布、散乱角度分布を測定した。さらに、得られた実験結果について、多重散乱を考慮したモンテカルロシミュレーションで再現計算を行い、液体水標的の阻止断面積を求めた。なお、MeV エネルギー領域の陽子線に対する液体の水の阻止断面積を測定した実験例は本研究が世界初である。本章では本研究で得られた結果を主に述べた第 5 章から第 8 章の内容について、改めてまとめ、今後の課題と展望について述べる。

9.1 エネルギー損失，散乱角度分布測定

標的透過後のエネルギー分布、散乱角度分布は、液体分子線法によって導入した液体の水を標的とした場合と、Al ワイヤーを標的とした場合とで、同じ外形を示した。第 5 での考察から、標的透過後の荷電粒子のエネルギー分布は標的が円形の断面を持つことを強く反映しており、さらに散乱角度分布の測定結果と併せて、多重散乱を考慮することで上手く説明できると考えられた。そこで、多重散乱を考慮したモンテカルロシミュレーションを GEANT4[33] を用いて製作し、実験結果の再現計算を行った。再現計算の結果は実験結果と非常に良く一致し、標的内で荷電粒子が受ける多重散乱を考えることで、実験結

果が説明されることを示した．また，Al ワイヤーの測定結果と液体標的の測定結果の比較から，液体分子線標的の形状を Al ワイヤーと同じ，円柱状として考えて良いことがわかり，このことから，液体分子線の模擬ターゲットとして Al ワイヤーは最適であることが分かった．

9.2 液体の水の阻止断面積

第 6 章と第 7 章では得られた実験結果をもとに液体の水の阻止断面積を求めた．He に対する液体の水の阻止断面積の値は，ICRU 49 の値と非常に良く一致した．また，過去の実験データなどと比較したところ，本研究の不確かさや過去データの不確かさを考慮すると，おおむね一致していることが分かった．

液体水標的に陽子線を照射した実験では，世界で初めて MeV エネルギー陽子に対する液体の水の阻止断面積を求めた．陽子に対する液体の水の阻止断面積の値は ICRU 49 の計算法による値や SRIM 2008 の値に対して 10 % 以上小さいことが分かった [12, 13]．また，Emfietzoglou らの，誘電応答関数を用いた理論計算による計算値と本研究の値は良く一致した [65]．

9.3 平均励起エネルギー

本研究で得られた阻止断面積の値をもとに，水の平均励起エネルギーの値を求めた．He に対する阻止断面積をもとに ICRU 49 と同じ計算法で求めた平均励起エネルギーの値は 72.4 ± 4.4 eV となった．このエネルギー領域では Barkas 補正項が大きく影響するため，Barkas 補正項の計算法を他の手法に変えることで，72 ～ 82 eV の範囲で値が大きく変わってしまうことが分かった．

陽子に対する液体の水の阻止断面積をもとに平均励起エネルギーの値を求めた場合は， 103 ± 9.1 eV となり，ICRU 49 の推奨する 75.0 eV から大きくずれた．陽子に対する阻止断面積では殻補正項が大きく影響するが，低エネルギー側では殻補正項の値を正確に求めることが難しいため，1500 ～ 2000 keV の陽子に体知る阻止断面積の値をもとに求めな

おしたところ, 89.6 ± 3.0 eV となった. 液体の水の平均励起エネルギーについては ICRU 73 などでは 78.0 eV であり, その他の実験や計算でも 80 eV 前後の値が選ばれている [8, 12, 61, 63, 64, 65]. 本研究では水素様波動関数を用いて計算された Khandelwall の値をもとに Bragg 加法則で殻補正項の値を求めている. 実際の水分子の電子は分子軌道で支配されているため, 化合物の阻止断面計算において, 本研究で求めた殻補正項は適用できない. その結果, 陽子に対する液体の水の阻止断面から求めた平均励起エネルギーの値が大きすぎたと考えられる. なお, Emfietzoglou らはこの殻補正項を誘電応答関数を用いて計算し直すことで, 他の方法で求められた平均励起エネルギーの値と矛盾することなく, 本研究とよく一致する阻止断面の値を計算によって求めている.

9.4 Bragg 加法則

第 8 章では液体のアルコールの阻止断面を求め, 液体の水およびアルコール間で Bragg 加法則が成立することを確認した. 測定で得られた液体のアルコールの阻止断面は 0.15 ~ 0.5 MeV の領域で SRIM 2008 の値と非常によく一致したが, 1.0 MeV 以上の領域で本研究で得られた阻止断面が SRIM 2008 の計算値より 20% 以上小さくなった. なお, 液体の水と同様に陽子に対する液体アルコールの阻止断面の測定に成功したのは本研究が性開発である.

液体の水, アルコールの阻止断面は分子内に含まれる CH_2 の数に比例して阻止断面が増加することが分かり, 液体の物質の阻止断面においても Bragg 加法則が成立することが分かった. また, Bragg ピーク頂点付近の阻止断面について, Bragg 加法則からのずれが見られたが, 分子の化学結合を考慮した Core and Bond 法で上手く説明することができた.

9.5 今後の課題と展望

まず, より広いエネルギー範囲において陽子に対する液体の水の阻止断面を求めることが急務である. 例えば, 本研究では水蒸気の阻止断面の値と液体の水の阻止断面の

値がほぼ同じ値となるエネルギー領域まで測定を行うことができなかった。 α 線を用いた実験では、物質の状態効果が現れるのは 1.0 MeV/u 以下のエネルギー領域とされているが [12, 64]、本研究では $1.0 \sim 2.0 \text{ MeV}$ の領域でも蒸気の阻止断面積の値と同じになることはなかった。フィッティング関数を用いた外挿では、 $2.0 \sim 3.0 \text{ MeV}$ のエネルギー領域で一致することが予想される。通常、原子番号の大きい荷電粒子に対する阻止断面積の値は、陽子に対する阻止断面積をもとに、有効電荷などを考慮したスケーリング計算から阻止断面積を予想していくのが普通である。しかし、実験データが存在しなかった陽子に対する液体物質の阻止断面積の値は、 α 線源を用いた測定データを逆に陽子に対する阻止断面積の値に逆にスケーリングして当てはめているのが現状である [14]。粒子線療法では近年、陽子線よりも優れた線量集中特性を持った炭素線を利用した重粒子線療法が新たに注目されており、治療法の選択肢を広げるためにも、陽子に対する液体の水の阻止断面積を広いエネルギー範囲で求めることが非常に重要な意義を持つ [15]。

次に、他の液体物質に対する測定も取り組まなければならない課題である。これまでは実験的制約により、 α 線源に対する液体物質の阻止断面積しか測定されてこなかったが、本研究はその制約を取り払ったということで非常に意義がある。アルコールなどの有機溶媒だけでなく、その他の液体物質についても阻止断面積を測定することで、液体物質の阻止断面積を統一的に取り扱うことのできるモデルを確立する方向がのぞまれる。

また、放射線物理とは別の方向として、真空中に噴射された液体物質の状態変化の様子を追うことも非常に重要である。例えば、液体の水は様々な分野で溶媒や冷却水などとして利用されるが、水が真空中に解放された場合にどのような状態変化を行うかについては未解明な部分が多い。特に本研究で用いた液体分子線の特性については、ノズル方向の温度、直径の変化などを蒸発してくる水分子の測定によって間接的に求めている例はあるものの [16]、それらを直接測定した例はまだ無く、ノズルの先端から 1 mm 離れた位置の液体分子線の直径を求めている本研究はその最初の例である。現在、開発が進められている核融合炉では、ダイバータ等の冷却に水が使用されることが検討されているが、このダイバータに微小な亀裂が入った際に、核融合炉の真空環境内でどのように水が変化するかについての情報が求められている。本研究では、液体分子線標的透過後の荷電粒子のエネル

ギーから液体分子線の直径を求めることができ、真空環境に噴射された液体分子線の変化を直接的に測定できる。今後の展開の一つの方向として、液体分子線形状のノズル方向の変化を測定し、真空内における液体分子線の特性を追うことも重要である。

本研究はこれまで不可能であった陽子に対する液体の水の阻止断面積を求めることに世界で初めて成功した。陽子に対する液体の水の阻止断面積研究においては、これまで理論計算によるアプローチしか行うことが出来なかったため、本研究は荷電粒子に対する液体物質の阻止断面積研究を躍進させた。今後、液体物質の阻止断面積研究は実験的研究が理論的研究と共に成果を出すことができる状況になると期待される。

参考文献

- [1] J. R. Tesmer and M. A. Nastasi, *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis* (Materials Research Society, 1995)
- [2] 木村雄治, 生体計測装置学入門 (コロナ社, 2004)
- [3] N. D. Wolf
- [4] H. G. D. Carvalho and H. Yagoda, Phys. Rev. **88**, 273 (1952)
- [5] A. Akhavan-Rezayat and R. B. J. Palmer, J. Phys. D **13**, 1971 (1980)
- [6] A. Haque, A. Mohammadi, and H. Nikjoo, Radiation Protection Dosimetry **13**, 71 (1985)
- [7] W. Neuwirth, U. Hauser, and E. Kühn, Z. Physik **220**, 241 (1969)
- [8] H. Bichsel and T. Hiraoka, Nucl. Inst. Meth. B **66**, 345 (1992)
- [9] H. Paul(2010), <http://www.exphys.uni-linz.ac.at/stopping/>
- [10] W. A. Wenzel and W. Whaling, Phys. Rev. **87**, 499 (Aug 1952)
- [11] P. Bauer, W. Käferböck, and V. Nečas, Nucl. Inst. Meth. B **93**, 132 (1994)
- [12] *Stopping powers and ranges for protons and alpha particles*, ICRU Report 49 (International Commission on Radiation Units and Measurements, 1993)
- [13] J. F. Ziegler, “Srim & trim,” (2008), <http://www.srim.org>
- [14] J. Ziegler and J. Manoyan, Nucl. Inst. Meth. B **35**, 215 (1988)
- [15] N. Kotcherov, *Atomic and Molecular Data for Radiationtherapy and Radiation Research*, IAEA TECDOC No. 799 (IAEA Publications, 1995)

- [16] M. Faubel, S. Schlemmer, and J. Toennies, *Z. Physik D* **10**, 269 (1988)
- [17] M. Faubel and T. Kisters, *Nature* **339**, 527 (1989)
- [18] F. Sobott, A. Wattenberg, H. Barth, and B. Brutschy, *Int. J. Mass. Spec.* **187**, 271 (1999)
- [19] A. Wattenberg, F. Sobott, H. Barth, and B. Brutschy, *Int. J. Mass. Spec.* **203**, 49 (2000)
- [20] J.-y. Kohno, F. Mafune, and T. Kondow, *J. Phys. Chem. A* **104**, 1079 (2000)
- [21] M. Kaneda, M. Shimizu, T. Hayakawa, H. Tsuchida, and A. Itoh, *J. Chem. Phys.* **132**, 144502 (2010)
- [22] P. Sigmund, *Particle Penetration and Radiation Effects*, Springer Series in Solid-State Sciences, Vol. 151 (Springer Berlin Heidelberg, 2006) ISBN 978-3-540-31718-0
- [23] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and U. Littmark, *The Stopping Range of Ions in Solids*, Vol. 1 (Pergamon, New York, 1985)
- [24] H. Bethe, *Z. Phys. A* **76**, 293 (1932)
- [25] C. Moller, *Ann. Physik.* **14**, 531 (1932)
- [26] M. C. Walske, *Phys. Rev.* **88**, 1283 (1952)
- [27] M. C. Walske, *Phys. Rev.* **101**, 940 (1956)
- [28] H. Bichsel and L. E. Porter, *Phys. Rev. A* **25**, 2499 (1982)
- [29] *CRC. Handbook of Chemistry and Physics, 73rd Edition* (1992)
- [30] G. S. Khandelwal, *Nucl. Phys. A* **116**, 97 (1968)
- [31] J. Ashley, R. H. Ritchie, and W. Brandt, *Phys. Rev. B* **5**, 2393 (1972)
- [32] J. Ashley, V. E. Anderson, R. H. Ritchie, and W. Brandt, Z_1^3 *Effect in the Stopping Power of Matter for Charged Particles: Table of Functions*, NAPS Document No. 02195
- [33] “Geant4,” (2008), <http://geant4.web.cern.ch/geant4/>
- [34] E. Bonderup, *Mat.-Fys. Medd.* **35** (1967)

- [35] J. Ashley, R. H. Ritchie, and W. Brandt, Phys. Rev. A **8**, 2402 (1973)
- [36] J. F. Ziegler, J. App. Phys. **85**, 1249 (1999)
- [37] F. Bloch, Ann. Phys. **16** (1933)
- [38] H. Bichsel, Phys. Rev. A **41**, 3642 (1990)
- [39] N. Bohr, Mat.-Fys. Medd. **18** (1948)
- [40] T. Kondow and F. Mafune, Annu. Rev. Phys. Chem **51**, 731 (2000)
- [41] D. M. Murphy and T. Koop, Q. J. R. Meteorol. Soc. **131**, 1539 (2005)
- [42] J. D. van der Waals, *Thesis* (Leiden, 1873)
- [43] G. S. Kell, J. Chem. Eng. Data **12**, 66 (1967)
- [44] C. A. Angell, J. Shuppert, and J. C. Tucker, J. Phys. Chem. **77**, 3092 (1973)
- [45] J.-y. Kohno, F. Mafune, and T. Kondow, J. Phys. Chem. A **104**, 243 (2000)
- [46] M. Kaneda, S. Sato, M. Shimizu, Z. He, K. Ishii, H. Tsuchida, and A. Itoh, Nucl. Instr. Meth. B **256**, 97 (2007)
- [47] S. Agostinelli, J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, and *et al.*, Nucl. Instr. Meth. A **506**, 250 (2003)
- [48] J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Dubois, and *et al.*, Nuclear Science, IEEE Transactions on **53**, 270 (2006)
- [49] Q. Yang, D. O'Connor, and Z. Wang, Nucl. Instr. Meth. B **61**, 149 (1991)
- [50] W. K. Chu, "Ion beam handbook for material analysis," (Academic Press, NY, 1977)
- [51] K. Lassila-Perini and L. Urbán, Nucl. Instr. Meth. A **362**, 416 (1995)
- [52] M. H. Mendenhall and R. A. Weller, Nucl. Instr. Meth. B **58**, 11 (1991)
- [53] M. H. Mendenhall and R. A. Weller, Nucl. Instr. Meth. B **227**, 420 (2005)
- [54] H. A. Bethe, Phys. Rev. **89**, 1256 (1953)
- [55] J. E. Valdés and N. R. Arista, Phys. Rev. A **31**, 492 (1994)
- [56] "National institute of standards and technology(nist)," <http://www.nist.gov/>
- [57] *Stopping powers for electrons and positrons*, ICRU Report 37 (International

- Comission on Radiation Units and Measurements, 1984)
- [58] S. Matteson, D. Powers, and E. K. L. Chau, Phys. Rev. A **15**, 856 (Mar 1977)
- [59] R. B. J. Palmer and A. Akhavan-Rezayat, J. Phys. D **11**, 605 (1978)
- [60] D. I. Thwaites, Physics in Medicine and Biology **26**, 71 (1981)
- [61] R. Garcia-Molina, I. Abril, C. D. Denton, S. Heredia-Avalos, I. Kyriakou, and D. Emfietzoglou, Nucl. Instr. Meth. B **267**, 2647 (2009)
- [62] N. Sakamoto, H. Ogawa, and N. Shiomi-Tsuda, Nucl. Instr. Meth. B **69**, 84 (1992)
- [63] H. Paul, Nucl. Instr. Meth. B **255**, 435 (2007)
- [64] *Stopping of ions heavier than helium*, ICRU Report 73 (International Comission on Radiation Units and Measurements, 2005)
- [65] D. Emfietzoglou, R. Garcia-Molina, I. Kyriakou, I. Abril, and H. Nikjoo, Phys. Med. Biol. **54**, 3451 (2009)
- [66] C. B. Kretschmer and R. Wiebe, J. Am. Chem. Soc. **71**, 1793 (1949)
- [67] 化学便覧 基礎編 (日本化学会)
- [68] V. Majer and V. Svoboda, *Enthalpies of Vaporization of Organic Compounds: A Critical Review and Data Compilation* (Blackwell Scientific Publications, Oxford, 1985)
- [69] “Nist chemistry webbook,” <http://webbook.nist.gov/chemistry/>

研究業績一覽

学術雑誌等に発表した論文

1. M. Shimizu, T. Hayakawa, K. Hisano, M. Kaneda, H. Tsuchida, A. Itoh,
“*Stopping cross-sections of liquid ethanol for swift He ions*”,
Accepted in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, Elsevier
Science.
2. M. Shimizu, T. Hayakawa, M. Kaneda, H. Tsuchida, A. Itoh,
“*Stopping cross-sections of liquid water for 0.3 - 2.0 MeV protons*”,
Vacuum, Elsevier Science, **84**, 1002-1004 (2010).
3. M. Shimizu, T. Hayakawa, M. Kaneda, H. Tsuchida, A. Itoh,
“*Measurements of stopping cross sections of liquid water for fast protons and
helium ions*”,
Journal of Physics: Conference Series, IOP Publishing, **194**, 132038 (2009).
4. M. Shimizu, M. Kaneda, T. Hayakawa, H. Tsuchida, A. Itoh,
“*Stopping cross sections of liquid water for MeV energy protons*”,
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, Elsevier Science, **267**,
2667-2670 (2009).

国際会議における発表

(発表者は○)

1. ○M. Shimizu, K. Hisano, T. Hayakawa, H. Tsuchida, A. Itoh,
“*Stopping Cross Sections of Liquid Ethanol for Swift Light Ions*”,
24th International Conference on Atomic Collisions in Solids, Tu-P-07, Krakow,
Portland, 18 - 23 July, 2010.
2. ○M. Shimizu, T. Hayakawa, H. Tsuchida, A. Itoh,
“*Stopping Power measurements using liquid targets*”,
19th International Conference on Ion-Surface Interaction 2009, Zvenigorod,
Russia, 21 - 25 August, 2009.
3. ○M. Shimizu, T. Hayakawa, M. Kaneda, H. Tsuchida, A. Itoh,
“*Measurements of stopping cross sections of liquid water for fast protons and
helium ions*”,
XXVI International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions,
Kalamazoo, Michigan, 22 - 28 July, 2009.
4. ○M. Shimizu, M. Kaneda, T. Hayakawa, H. Tsuchida, M. Imai, H. Shibata,
A. Itoh,
“*Stopping Cross Section of Liquid Water for MeV Energy Protons*”,
23rd International Conference on Atomic Collisions in Solids, South Africa,
August, 2008.

国内学会，シンポジウム等における発表

1. ○清水森人，久野浩平，早川智之，松橋崇寛，河崎正人，金田実，今井誠，柴田裕
実，土田秀次，伊藤秋男，

- 「液体水標的における高速荷電粒子線前方散乱計算の原子間ポテンシャル評価」,
日本原子力学会 2010 年「秋の年会」, 北海道大学, 2010 年 9 月.
2. ○清水森人, 早川智之, 久野浩平, 金田実, 今井誠, 土田秀次, 柴田裕実, 伊藤秋男,
「高速荷電粒子線前方散乱による液体標的の阻止断面積測定」,
第 65 回日本物理学会年次大会, 岡山大学, 2010 年 3 月.
3. ○清水森人, 早川智之, 久野浩平, 今井誠, 土田秀次, 柴田裕実, 伊藤秋男,
「MeV 荷電粒子線に対する液体水標的の阻止能測定」,
第 27 回日本応用物理学会講演奨励賞受賞記念講演, 東海大学, 2010 年 3 月.
4. ○清水森人, 早川智之, 久野浩平, 土田秀次, 伊藤秋男,
「高速軽イオンに対する水の阻止能測定-SRIM コードの見直しを-」,
日本原子力学会関西支部 第 5 回若手研究者による研究発表会」, 大阪, 2010 年 3 月.
5. ○清水森人, 早川智之, 久野浩平, 金田実, 土田秀次, 今井誠, 柴田裕実, 伊藤秋男,
「高速荷電粒子線に対する液体水標的の阻止断面積測定」,
第 27 回日本応用物理学会, 富山大学, 2009 年 9 月.
6. ○清水森人, 早川智之, 金田実, 土田秀次, 今井誠, 柴田裕実, 伊藤秋男,
「高速荷電粒子線に対する液体水標 的の阻止能測定」,
日本原子力学会 2008 年「春の年会」, 東京工業大学, 2009 年 3 月.
7. ○清水森人, 早川智之, 金田実, 土田秀次, 今井誠, 柴田裕実, 伊藤秋男,
「MeV エネルギー領域陽子線に対する液体標的の阻止断面積測定 III」, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 岩手大学, 2008 年 9 月.
8. ○清水森人, 金田実, 早川智之, 西村荒雄, 土田秀次, 今井誠, 柴田裕実, 伊藤秋男,
「MeV エネルギー領域陽子線に対する液体標的の阻止断面積測定 II」,
日本物理学会第 63 回年次大会, 近畿大学, 2008 年 3 月.
9. ○清水森人, 金田実, 早川智之, 西村荒雄, 土田秀次, 今井誠, 柴田裕実, 伊藤秋男,
「液体水標的の阻止能測定法の変遷と開発」,
フォーラム 21, 大阪府立大学, 2008 年 1 月.

10. ○清水森人，金田実，西村荒雄，早川智之，入来仁隆，土田秀次，伊藤秋男，
「MeV エネルギー領域陽子線に対する液体標的の阻止断面積測定」，
日本物理学会 2007 年秋季大会，北海道大学，2007 年 9 月．

受賞，表彰等

1. 平成 21 年度 日本原子力学会関西支部学生賞，清水森人，2010 年 5 月．
2. 第 27 回日本応用物理学会講演奨励賞，清水森人，2010 年 3 月．

謝辞

本論文は京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻において、伊藤秋男教授のご指導のもと研究成果をまとめた物である。研究に際して、多くの方々のご助力を賜りました事を末尾ながらここに御礼申し上げます。

指導教官である伊藤秋男教授には本研究全般から研究姿勢に至るまで様々なご指導を賜りました事をここに御礼申し上げます。功刀資彰教授には有益なご指摘とご助言を頂きました。心より感謝の意を表します。また、神野郁夫教授、柴田裕実准教授、松尾二郎准教授、土田秀次准教授、瀬木利夫講師、今井誠助教、間嶋拓也助教には多くの助言を頂いた事に謹んで感謝の意を表します。

金田実氏には先輩として実験全般から丁寧にご指導していただいた事をここに御礼申し上げます。研究室の皆さんにはマシンタイム等で多大なご助力を頂くと共に、互いに切磋琢磨して研究を進める活力にあふれた雰囲気の中で研究をする事ができました。心から感謝いたします。特に共に実験をした何志文氏、早川智之氏、久野浩平氏、河崎正人氏に深く感謝いたします。

また、非常勤講師としての勤務先であった京都府立大学の春山洋一教授、斉藤学准教授、京都教育大学附属高等学校の先生方にも多大な助言と御助力を頂きました。深く感謝いたします。

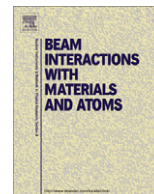
最後に、10年間にわたる私の学生生活を支えてくれた家族に深く感謝しております。立派な研究者になれるよう今後も日々精進したいと思います。ありがとうございました。

清水森人



Contents lists available at ScienceDirect

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B

journal homepage: www.elsevier.com/locate/nimb

Stopping cross-sections of liquid ethanol for swift He ions

M. Shimizu*, T. Hayakawa, K. Hisano, M. Kaneda, H. Tsuchida, A. Itoh

Department of Nuclear Engineering, Kyoto University, Kyoto 605-8501, Japan

ARTICLE INFO

Article history:

Received 1 August 2010

Received in revised form 18 December 2010

Available online xxxxx

Keywords:

Energy loss

Liquid ethanol

Helium ion

ABSTRACT

Energy loss spectra of 4.0 MeV helium ions after penetrating through liquid phase ethanol have been measured at scattering angles from 10 to 50 mrad. Experimental data were fitted with Monte Carlo simulations using a GEANT4 toolkit, and stopping cross-sections were deduced in an energy range from 1.9 to 4 MeV. Present results are in fairly good agreement with previous experimental data and SRIM2008 values. By applying the Bragg's additivity rule, the mean excitation energy was deduced as $I = 62.0 \pm 1.8$ eV for liquid ethanol. The present I -value is compared with other experimental and calculated results.

© 2010 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Study of stopping process of swift charged particles in matter is of great importance in nuclear physics, radiation chemistry and many other fields [1]. To date numerous experimental and theoretical work of stopping power have been conducted and are compiled in several review articles and web sites [2–4] and references therein. It reveals that stopping power data scatters rather largely at low and medium impact energies covering stopping power maxima, especially for compound materials. This is because the energy loss is affected to some extent by chemical bond effects of target materials. On the other hand, the stopping power for a compound is often estimated by the linear combination of the stopping powers of constituent atoms. Validity of this Bragg's additivity rule has been examined by various research groups for various gases, vapors and liquids [5–8], and it is found that the rule may not be so straightforward unless chemical phase effects are taken into consideration. In order to achieve better understanding of the validity of this rule, it is important to accumulate stopping data for various phases of materials, particularly for liquid phase materials for which experimental data available in literatures are scarce.

Most stopping power measurements for liquid materials have been carried out for alpha particles emitted from radioactive sources [6–8]. Recently, we constructed an accelerator-based experimental facility dedicated to experiments using liquid molecular jet targets in vacuum, originally developed by Faubel et al. for laser experiments [9], and stopping cross-sections for liquid water have been successfully obtained for MeV protons [10,11]. This method has such an advantage that the stopping power data can

be derived over a rather wide energy range even though the incident energy of the projectile ions from the accelerator is fixed as reported in [12].

In this work, we extend stopping power measurements to liquid ethanol (C_2H_5OH) using 4.0 MeV He ions. The choice of liquid ethanol is due to two reasons. First, we can obtain a stable jet target much easier than other liquids for long enabling us to perform precise measurements. Second, several experimental and recommended values available in literature [6,7,3]. Stopping cross-sections defined as, $\sigma = -(1/N)dE/dx$, are presented in units of $[10^{-15} \text{ cm}^2/\text{mol}]$ for the energy range of 1.9–4.0 MeV, where N is the number density of ethanol molecules. Also, we obtained the mean excitation energy I of liquid ethanol by using the Bragg's additivity rule.

2. Experimental

The experiment was carried out at the Quantum Science and Engineering Center heavy ion accelerator facility of Kyoto University. Fig. 1 shows a schematic diagram of our experimental setup. The experimental method and data acquisition procedure have been described elsewhere [10,11]. Briefly, a beam of 4.0 MeV He^{2+} extracted from a 2.5 MV Van de Graaff accelerator was carefully collimated to a rectangular shape of $10 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$ by three knife-edged 2-dimensional slits separated by 900 mm from each other before entering a collision chamber. The slits were manipulated with a precision of $1 \mu\text{m}$. The liquid target was extracted from a super fine nozzle with an outlet aperture of $20 \mu\text{m}$ in diameter and was trapped in a liquid nitrogen trap at the base of the collision chamber. A flow rate of liquid was 1.0 mL/min and a working pressure during the experiment was about 10^{-2} Pa. Projectile ions were incident on the liquid target at a position 1 mm downstream of the nozzle exit. The temperature and the density of liquid at this

* Corresponding author.

E-mail address: m-shimizu@nucleng.kyoto-u.ac.jp (M. Shimizu).



Stopping cross-sections of liquid water for 0.3–2.0 MeV protons

M. Shimizu*, T. Hayakawa, M. Kaneda, H. Tsuchida, A. Itoh

Department of Nuclear Engineering, Kyoto University, Kyoto 606-8501, Japan

ABSTRACT

Keywords:
Stopping power
Liquid water
MeV protons
Energy loss measurements

We have measured stopping cross-sections of liquid water for fast H^+ ions in an energy range from 0.3 to 2.0 MeV. The liquid water target was prepared in vacuum by using a liquid molecular jet technique. The energy and angular distribution of outgoing projectiles after passing through the liquid target were measured at various scattering angles ranging up to 50 mrad. The experimental results have been successfully reproduced by Monte Carlo simulation calculations (GEANT4 v9.1.p03 toolkit) by taking account of the small angle multiple scattering inside the liquid. The stopping cross-sections obtained from fitting simulations are found to be in fairly good agreement with recent theoretical calculations.

© 2009 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

The energy loss of charged particles traversing liquid matter plays an important role in many fields of astronomy, atmospheric science, life science and radiotherapy including charged particle cancer therapy [1–5]. However, experimental data of stopping power of liquid water for MeV energy particles are available only for alpha particles or Li ions which were obtained either from a radioisotope radiation source or from nuclear reactions [6]. As for protons and carbon ions, which are frequently utilized as the most important projectile ions in particle-cancer therapy, no experimental investigations have ever been done so far for liquid water target. At present proton data available in literature are only for vapour and solid phase targets [7,8]. It should be stressed that these data were taken decades ago, and no systematic experimental investigations have been done for liquid phase water. In this work, we measured energy loss spectra of MeV energy protons passing through a water jet target prepared in vacuum [9–11].

2. Experimental

The experiment was carried out at the QSEC heavy ion accelerator facility of Kyoto University. Fig. 1 shows a schematic drawing of our collision chamber which consists of a liquid jet target source, a liquid-nitrogen cold trap, two solid-state detectors (SSD). Liquid jet targets were produced by essentially the same method as described elsewhere [9–15]. A liquid jet target was extracted vertically from a super fine nozzle with an aperture of either 20 or

50 μm in diameter and was trapped in a liquid-nitrogen trap mounted on the base of the collision chamber.

An incident beam of protons (or helium ions) extracted from a Van de Graaff accelerator was carefully collimated by three knife-edged 2D slits separated by 900 mm from each other before entering the collision chamber. The 2D slits were manipulated with a precision of 1 μm and the incident proton beam was collimated to 10 and 50 μm in vertical and horizontal dimensions, respectively. Projectile ions were incident on the liquid target at a position 1 mm downstream from the nozzle exit. The temperature and density of liquid water were estimated to be 0 °C and 0.99986 g/cm³ (at 0 °C) from [16]. The outgoing energy was measured with a moveable solid-state detector (Front SSD) enabling us to obtain energy loss spectra as a function of the scattering angle ranging up to 50 mrad. The detection area of the Front SSD (Canberra Inc., PD25-12-100AM) was restricted to 1 × 5 mm by placing a rectangular metal plate on the detector surface. The energy calibration was made with a standard alpha source ²⁴¹Am and the resolution (FWHM) was 12 keV. The Rear SSD fixed at the position 30 mm from the beam axis was used as a monitor of the incident beam intensity and was operated simultaneously with the Front SSD. The detection angle of the Rear SSD was 55 ± 5 mrad. The overall systematic uncertainty was 2.0% at most.

3. Results and discussion

Fig. 2 shows typical energy spectra of 2.0 MeV protons after passing through liquid water extracted from an aperture of 50 μm in diameter. Data shown are taken at scattering angles of 10, 30 and 50 mrad. The relative angular distribution, defined as the intensity ratio $Y(\theta)/Y_m$ between the total yields measured by the Front SSD and the Rear SSD, is depicted in Fig. 3, where the data are

* Corresponding author.

E-mail address: m-shimizu@nucleng.kyoto-u.ac.jp (M. Shimizu).

Measurements of stopping cross sections of liquid water for fast protons and helium ions

M. Shimizu^{*,1}, T. Hayakawa^{*}, M. Kaneda^{*}, H. Tsuchida[†], A. Itoh^{*,2}

Department of Nuclear Engineering, Kyoto University, Kyoto, 606-8501, Japan

[†]Quantum Science and Engineering Center, Kyoto University, Kyoto 606-8501, Japan

Synopsis Stopping cross sections of liquid water for MeV energy protons and helium ions have been measured by using a liquid jet target in vacuum. Energy loss spectra after passing through the target were measured at scattering angles from 5.0 to 50 mrad. The energy loss spectra have been successfully reproduced by Monte Carlo simulation calculations (GEANT4 v9.1.p03 toolkit) by taking account of multiple scattering of projectile particles inside the target. For protons, the stopping cross sections were deduced in an energy range from 0.3 to 2.0 MeV. It was found that the present data are in fairly good agreement with recent theoretical calculations.

Study of energy loss of swift charged particles in matter is of great important for many applications in biology, medical therapy and life science. The accuracy of the energy loss data required for these applications is expected to be better than a few % in the case of protons in water. At present, however, experimental work of energy loss is scarce and most data available were taken more than 20 years ago. It should be pointed out that most previous studies have been made only for vapor and solid targets of water, and no systematic experimental work has been done for liquid phase water.

In this work, we measured energy loss spectra of MeV energy light ions of proton and helium passing through a water jet target prepared in vacuum [1, 2, 3]. The liquid molecular jet target was extracted from a supersonic nozzle with a diameter of 20 (and 50) microns and was trapped in a liquid nitrogen trap. The outgoing energy was measured with a movable solid state detector enabling us to obtain energy loss spectra as a function of the scattering angle ranging up to 50 mrad. The density of the liquid target was estimated from the target temperature at the hitting point of a projectile beam. Stopping cross sections were deduced from careful analysis of the energy loss spectra for a wide range of projectile energies. Namely, we performed Monte Carlo simulation calculations (GEANT4 v9.1.p03) [4] of energy loss spectra by taking account of small-angle multiple scattering inside the target. As a result, the experimental energy loss spectra were reproduced almost perfectly for all the scattering angles investigated. The stopping cross sections of water for protons at energies from 0.3 to 2.0 MeV are presented in Fig. 1. Comparison with conventional stopping power data [5, 6] of SRIM and PSTAR shows that our data are nearly equivalent to SRIM2008 (vapor phase water) data multiplied by 0.89 [3]. Liquid data of SRIM2008 appear better agreement with our

data below 1.0 MeV. Here, it is noteworthy that the present data coincide fairly well with recent theoretical calculations with an improved dielectric description of the Bethe theory [7].

Stopping cross sections for fast helium ions were also obtained in this way and are presently being examined carefully.

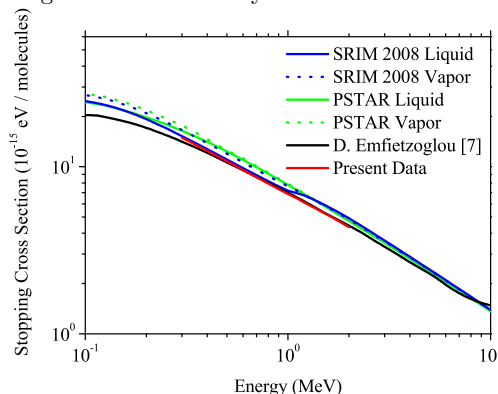


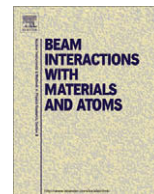
Fig. 1. Stopping cross section of water for protons

References

- [1] A. Itoh, M. Kaneda, S. Sato, K. Ishii, H. Tsuchida, *Nucl. Instr. and Meth. B*, **245** (2006) 76.
- [2] M. Kaneda, S. Sato, M. Shimizu, Z. He, K. Ishii, H. Tsuchida, A. Itoh, *Nucl. Instr. and Meth. B*, **256** (2007) 97.
- [3] M. Shimizu, M. Kaneda, T. Hayakawa, H. Tsuchida, A. Itoh, to appear in *Nucl. Instr. and Meth. B*, (2009).
- [4] <http://geant4.web.cern.ch/geant4/>.
- [5] J. F. Ziegler, <http://www.srim.org>.
- [6] <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/PSTAR.html>.
- [7] D. Emfietzoglou, A. Pathak and H. Nikjoo, *Radiat. Prot. Dosim.* **126** (2007) 97-100.

¹E-mail: m-shimizu@nucleng.kyoto-u.ac.jp

²E-mail: ito@nucleng.kyoto-u.ac.jp



Stopping cross sections of liquid water for MeV energy protons

M. Shimizu^{a,*}, M. Kaneda^a, T. Hayakawa^a, H. Tsuchida^b, A. Itoh^a

^aDepartment of Nuclear Engineering, Kyoto University, Kyoto 606-8501, Japan

^bQuantum Science and Engineering Center, Kyoto University, Kyoto 606-8501, Japan

ARTICLE INFO

Article history:

Available online 27 May 2009

PACS:

34.50.Bw

Keywords:

Stopping power

Liquid water

MeV protons

Energy loss measurements

ABSTRACT

Cross sections for the stopping of swift protons in liquid water have been measured for the first time by using a liquid water jet target of 50 μm in diameter. The energy loss spectra of incident 2.0 MeV protons were measured at scattering angles of 5.0–50 mrad. Experimental energy loss spectra have been successfully reproduced by Monte Carlo simulation calculations (GEANT4.9.1.p02 toolkit) by taking account of multiple scattering of projectile ions inside the liquid water target. The present stopping cross sections are found to be considerably smaller than other standard stopping power data, revealing e.g. about 11% deviation from those of SRIM2003.

© 2009 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

The study of collision interactions between swift charged particles and liquid materials has gained increasing interest in various fields of astronomy, atmospheric science, life science and radiotherapy including ion beam cancer therapy [1–5]. As the major component of the human body is water, an accurate knowledge of e.g. the stopping power of liquid water for energetic charged particles such as protons and carbon ions is of great importance and urgently required in ion radiotherapy to achieve an accurate determination of the dose distribution in diseased parts of the patient [6,7].

To date, however, most previous studies of the stopping power of water for MeV energy ions have been made only for vapor and ice targets, and little experimental data are available for liquid phase water. Experimental studies using liquid water were carried out more than 20 years ago using radioactive alpha sources [8,9], and no subsequent investigations have been reported.

At present the stopping power data are available from various conventional program codes such as SRIM [10] and PSTAR [11] as summarized in [12]. Recommended data from these codes are the outcome of a compilation of numerous experimental and theoretical data covering a wide range of projectile ions and target materials. Data are available also for liquids such as water for which the Bragg additive rule is adopted semi-empirically. Hence, it is of great importance for both fundamental and practical reasons to perform experimental investigations of liquid water.

For this purpose, we have constructed a dedicated collision chamber for liquid-in-vacuum experiments using a liquid jet technique [13,14]. In this work, we performed energy loss experiments using a 2.0 MeV proton beam passing through a liquid water target. From careful inspection of energy loss spectra measured at various scattering angles, molecular stopping cross sections defined as $\sigma(E) = \rho^{-1}(dE/dx)$, were deduced for the first time. Here, (dE/dx) is the linear stopping power and ρ the density of the target. The present results are evaluated in comparison with available data from conventional stopping power codes.

2. Experimental

The experiment was carried out at the QSEC heavy ion accelerator facility of Kyoto University. Fig. 1 shows a schematic drawing of our collision chamber which consists of a liquid jet target source, a liquid-nitrogen cold trap, two solid-state detectors (SSDs) and a Faraday cup.

Liquid jet targets were produced by essentially the same method as described in [13–18]. A liquid jet of distilled water of purity 99.99% was extracted vertically from a super fine nozzle (MUSASHI Engineering Inc.) with an aperture of 50 μm in diameter and was trapped in the liquid nitrogen trap mounted on the base of the collision chamber. A flow rate of 1.0 ml/min was used to maintain the stability of the liquid jet and to keep a good vacuum in the collision chamber.

An incident beam of 2.0 MeV protons extracted from a Van de Graaff accelerator was carefully collimated by two knife-edged 2D slits separated by 900 mm from each other before entering the collision chamber. The 2D slits were manipulated with a

* Corresponding author.

E-mail address: m-shimizu@nucleng.kyoto-u.ac.jp (M. Shimizu).